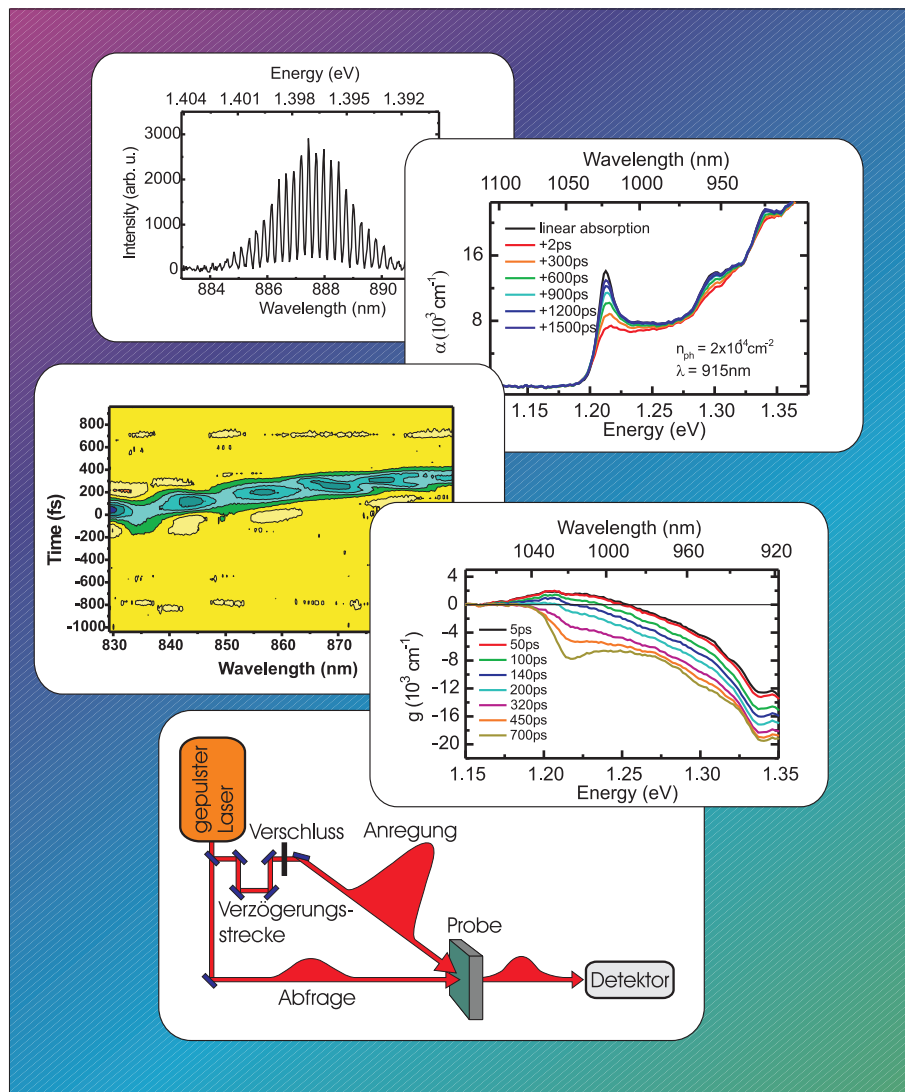


Transiente Ladungsträgerdynamik und optische Verstärkung in III-V-Halbleitern



SEBASTIAN BORCK

Transiente Ladungsträgerdynamik und optische Verstärkung in III-V-Halbleitern

DISSERTATION

zur Erlangung des
DOKTORGRADES DER NATURWISSENSCHAFTEN
(DR. RER. NAT.)

dem Fachbereich Physik
der Philipps-Universität Marburg



vorgelegt von
Sebastian Borck
aus Stadthagen

Marburg/Lahn, 2006

Vom Fachbereich Physik der Philipps-Universität
Marburg als Dissertation angenommen am:

16.06.2006

Erstgutachter :
Zweitgutachter :

Prof. Dr. W. W. Rühle
Prof. Dr. S. W. Koch

Tag der mündlichen Prüfung:

06.07.2006

Once we know the number one, we believe that we know the number two, because one plus one equals two. We forget that first we must know the meaning of plus.

- Alpha 60
Alphaville

Teile dieser Arbeit wurden bereits vorab veröffentlicht.

Publikationen in wissenschaftlichen Zeitschriften:

S. Borck, S. Chatterjee, B. Kunert, K. Volz, W. Stolz, J. Heber, W. W. Rühle, N. C. Gerhardt und M. R. Hofmann:

Lasing in optically pumped GaNAsP/GaP heterostructures

Applied Physics Letters, akzeptiert zur Publikation am 25. Mai 2006

Konferenzbeiträge:

Kapil Kohli, Sebastian Borck, Christoph Lange, Sangam Chatterjee, Kerstin Volz, Wolfgang Stolz, Lutz Geelhaar, Henning Riechert, Klaus Köhler und Wolfgang Rühle:

Transient gain spectroscopy in III-V semiconductor structures

Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Arbeitskreis Festkörperphysik, Deutschland, 2006

Sebastian Borck, Jörg D. Heber, Bernardette Kunert, K. Volz, Wolfgang Stolz, Sangam Chatterjee und Wolfgang W. Rühle

Lasing Action in Optically Pumped Ga(NAsP)/GaP Heterostructures

Conference on Lasers and Electro-Optics / Quantum Electronics and Laser Sciences Conference, USA, 2006

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	III
Tabellenverzeichnis	V
1 Einleitung	1
2 Experimentelle und theoretische Grundlagen	5
2.1 Transiente Absorptionsspektroskopie	5
2.2 Experimentelle Realisierung	9
2.3 Datenkorrekturen	12
2.4 Deutung und Theorie der transienten Absorption	17
2.4.1 Physikalische Deutung der differentiellen Absorption	17
2.4.2 Theoretische Beschreibung der transienten Absorption	20
3 Verdünnte Nitride	25
3.1 Konventionelle III-V-Verbindungshalbleiter	25
3.2 Bandstruktur von Ga(NAs)	27
3.3 Metastabilität und thermodynamische Eigenschaften	31
3.4 (GaIn)(NAs)	33
3.4.1 Anwendung	33
3.4.2 Metastabilität und Wachstum	36
3.4.3 Blauverschiebung der Bandkante durch Ausheizen	37
3.4.4 Lokalisierungseffekte	39
4 Transiente optische Verstärkung in III-V-Halbleitern	41
4.1 (GaIn)As	41
4.1.1 (GaIn)As bei niedrigen Anregungsdichten	43
4.1.2 Optische Verstärkung in (GaIn)As	46
4.1.3 Vergleich mit einer mikroskopischen Theorie	49
4.2 (GaIn)(NAs) I: MBE	52
4.2.1 Transiente Absorption bei moderaten Anregungsdichten	52
4.2.2 Optische Verstärkung	56
4.2.3 Vergleich zur Theorie	58

4.3	(GaIn)(NAs) II: MOVPE	61
4.4	Zusammenfassung	64
5	GaP-basierende Halbleiterlaser	67
5.1	Emission von Ga(NPAs) / GaP-Heterostrukturen	70
5.2	Emission von Ga(NAs) / GaP-Heterostrukturen	72
5.3	Verstärkungsspektren von Ga(NPAs) / GaP	75
5.4	Zusammenfassung und Ausblick	77
6	Braggstrukturen	79
7	Dynamik ungeordneter III-V-Nitride	85
7.1	Ga(NAs)	86
7.2	(GaIn)(NAs)	92
7.3	Getempertes (GaIn)(NAs)	97
7.4	Zusammenfassung	102
8	Zusammenfassung und Ausblick	105
A	Symbol- und Abkürzungsverzeichnis	109
A.1	Symbole	109
A.2	Abkürzungen	110
	Literaturverzeichnis	113
	Danksagung	123

Abbildungsverzeichnis

2.1	Prinzip der Anrege-Abfrage-Spektroskopie.	7
2.2	Weißlicht-Spektrum	10
2.3	Aufbau der Weißlicht-DTS	10
2.4	Chirpkorrektur	14
2.5	Differenzielle Absorptionsspektren eines GaAs-Substrats	16
2.6	Mechanismen der differentiellen Absorption	18
3.1	Bandlückenenergien wichtiger III-V-Halbleiter	27
3.2	Bandlücke von $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$	28
3.3	Schema des BAC-Modell	29
3.4	Bandlücke von $\text{Ga}_{1-y}\text{In}_y\text{N}_x\text{As}_{1-x}$	35
3.5	Bandlücke von $(\text{GaIn})(\text{NAs})$: Superzellrechnungen	39
4.1	Lineare Absorptionsspektren der Probe MOD24	42
4.2	Transiente Absorptionsspektren der Probe MOD24	45
4.3	Transiente Verstärkungsspektren der Probe MOD24 I	47
4.4	Transiente Verstärkungsspektren der Probe MOD24 II	48
4.5	Theoretisches Absorptionsspektrum der Probe MOD24	49
4.6	Verstärkungsspektren von $(\text{GaIn})\text{As}$: Theorie und Experiment	50
4.7	Transiente Ladungsträgerdichte der Probe MOD24	51
4.8	Probe 12934 bei niedrigen Anregungsdichten	54
4.9	Probe 12934 bei hohen Anregungsdichten	55
4.10	Probe 12934: Optische Verstärkung	57
4.11	Probe 12934: Vergleich von Theorie und Experiment I	59
4.12	Probe 12934: Vergleich von Theorie und Experiment II	60
4.13	Lineare Absorption der Probe 13340	61
4.14	Differenzielle Absorption der Probe 13340	62
4.15	Optische Verstärkung der Probe 13340	63
5.1	Indirekte Halbleiter	67
5.2	Versuchsaufbau für PL-Messungen an $\text{Ga}(\text{NPAs})$	68
5.3	Emission von $\text{Ga}(\text{NPAs})$	70
5.4	Kennlinien von $\text{Ga}(\text{NPAs})$ -MQWs	71

5.5	Emission von Ga(NPAs)	72
5.6	Kennlinie der Probe 22992	73
5.7	Laserschwelle der Probe 22992	74
5.8	Lasermode der Probe 22991	76
5.9	Verstärkungsspektrum der Probe 22991	77
6.1	Winkelabhängige DTS	82
7.1	Lineare Absorptionsspektren der Ga(NAs)-Proben	88
7.2	I3257 bei 4,5 mW	89
7.3	I3257 bei 1,35 mW	89
7.4	I3259: Transienten bei 2,45 mW	90
7.5	I3259 bei 2,45 mW: Spektren	91
7.6	Lineare Absorption gitterangepasster (GaIn)(NAs)-Quantenfilme	93
7.7	Differenzielle Absorptionsspektren der Probe I3268	94
7.8	Differenzielle Absorptionsspektren der Probe I3267	95
7.9	Differenzielle Absorptionsspektren der Probe I3266	96
7.10	Lineare Absorption ausgeheizter (GaIn)(NAs)-Quantenfilme	98
7.11	TA der Probe I3268 nach dem Ausheizen	99
7.12	TA der Probe I3267 nach dem Ausheizen	100
7.13	TA der Probe I3266 nach dem Ausheizen	101

Tabellenverzeichnis

3.1	Bowingkoeffizient einiger ternärer III-V-Halbleiter	26
3.2	Atomradien und Elektronegativität von III-V-Halbleitern	29
3.3	Bindungsverhältnisse in $\text{Ga}_{1-y}\text{In}_y\text{N}_x\text{As}_{1-x}$	38
3.4	Energiebilanz in (GaIn)(NAs)	38
6.1	Schichtstruktur Probe 22606	80
7.1	Ga(NAs)-Proben	86
7.2	Strukturparameter gitterangepasster (GaIn)(NAs)-Proben	93
7.3	Relaxationszeiten gitterangepasster (GaIn)(NAs)-Proben	102

1 Einleitung

Seit ihrer Erfindung in den sechziger Jahren des 20. Jahrhunderts haben Halbleiterlaser eine rasante Entwicklung vollzogen und sind in eine Vielzahl von Anwendungsgebieten vorgedrungen. Laserdioden in optischen CD- und DVD-Laufwerken bieten in der Unterhaltungselektronik qualitativ hochwertige Audio- und Videowiedergabe zu geringen Preisen und ermöglichen Computern die Speicherung großer Datenmengen auf transportablen Medien. In der Telekommunikation erlauben optische Glasfasernetze in Verbindung mit Laserdioden die Übertragung höchster Datenmengen über große Entfernungen und machten erst so den überwältigenden Erfolg des Internets seit Mitte der neunziger Jahre möglich. Laserdioden mit speziell abgestimmten Emissionswellenlängen finden vielfältige Anwendungen in der Spektroskopie und Analysetechnik, erleichtern mittels Bar-Code-Scannern Logistikaufgaben und ermöglichen Laserdruckern gleichzeitig hohe Druckqualität und -geschwindigkeit. Hochleistungslaserdioden eignen sich als effiziente Pumplichtquellen für eine Vielzahl von Lasertypen und werden für die Materialbearbeitung eingesetzt. Laserprojektorsysteme versprechen zukünftig riesige Bildgrößen bei bislang unerreichter Bildschärfe.

Trotz all dieser Erfolge gibt es jedoch nach wie vor beträchtliche Herausforderungen für die weitere Entwicklung von Laserdioden und ihrer Anwendungsmöglichkeiten. Zwei Aspekte der zukünftigen Entwicklung sollen in dieser Arbeit näher untersucht werden. Die erste Herausforderung ist der Wunsch nach kostengünstigen optischen Netzwerken für den Kurz- und Mittelstreckenbereich. Existierende optische Datennetzwerke setzen auf eine Datenübertragung bei Wellenlängen von $1,31\text{ }\mu\text{m}$ bzw. $1,55\text{ }\mu\text{m}$, vorgegeben durch die Dispersions- bzw. Absorptionsminima bestehender Glasfasern. Die hierfür bislang verwendeten Laserdioden auf InP-Basis sind allerdings in verschiedenen Punkten nicht optimal. Schlechte thermische Eigenschaften und Schwierigkeiten bei der Realisierung von oberflächenemittierenden Laserbauformen setzen dem weiteren Entwicklungspotenzial und den Möglichkeiten zur Kostenminimierung Grenzen. Anwendungen für den Endverbraucher sind bisher meist wenig attraktiv. Seit Jahren wird daher intensiv nach preisgünstigeren Alternativen für dieses Materialsystem geforscht.

Als besonders vielversprechend hat sich in den vergangenen Jahren das Material-

system (GaIn)(NAs) auf Galliumarsenidsubstraten herausgestellt, welches erstmals 1996 beschrieben wurde [Kon96b]. Dieses stellt Laserstrukturen mit guter Temperaturcharakteristik, großer absoluter und differenzieller Verstärkung sowie schneller Modulationsfähigkeit in Aussicht, während die weit entwickelte GaAs-Technologie dank dielektrischer Spiegel aus AlAs / GaAs-Schichten die einfache und kostengünstige Realisierung auch oberflächenemittierender Laser ermöglicht. Kommerzielle Laserdioden im Bereich $1,3\ \mu\text{m}$ sind bereits erhältlich und neuere Forschungen erschließen auch den Bereich größerer Wellenlängen. Aber nicht nur für Laserdioden scheint dieses Materialsystem außerordentlich vielversprechend. Auch Anwendungen im Bereich der Photovoltaik, der Nahinfrarot-Photodetektoren sowie für Heterobipolartransistoren liegen nahe. Allerdings gehört (GaIn)(NAs) zur Materialklasse der sogenannten verdünnten Nitride. Unter ihnen versteht man eine Reihe von III-V-Halbleitern, bei denen ein kleiner Prozentsatz des Gruppe-V-Elements durch Stickstoff substituiert ist. Diese neuartigen, metastabilen Materialien zeichnen sich durch eine äußerst komplexe Bandstrukturbildung aus, deren Physik bis heute noch nicht vollständig verstanden ist. Ein besseres Verständnis der reichhaltigen und oft ungewöhnlichen Physik dieser neuen Klasse von Halbleitern ist unerlässlich, um die gezielte Entwicklung von Bauelementen auf Basis von (GaIn)(NAs) voranzutreiben.

Eine andere Herausforderung ist die Verbindung von Laserdioden mit der Siliziumtechnologie. Silizium ist unangefochten das kommerziell bedeutendste Halbleitermaterialsystem, das mit Ausnahme spezieller Anwendungen in der Leistungs- und Hochfrequenzelektronik fast den gesamten Markt der Mikroelektronik beherrscht. Im Bereich der Optoelektronik sind seine Möglichkeiten jedoch beschränkt. Als indirekter Halbleiter ist Silizium ein sehr schlechter Lichtemitter, so dass Laser- und effiziente Leuchtdioden nicht einfach realisiert werden können. Dennoch ist die Vorstellung, die Generierung und Detektierung von Licht mit einer effizienten Datenverarbeitung auf einem einzigen, kostengünstigen Chip vereinigen zu können, überaus verlockend. Daher werden Lösungen für Laser auf Siliziumbasis seit Jahren intensiv erforscht. Durchschlagende Erfolge, die den Weg zu kommerziell nutzbaren Technologien weisen könnten, sind jedoch bislang nicht gelungen.

In dieser Arbeit werden Beiträge zu diesen beiden wichtigen Themengebieten der Halbleiterlaserforschung präsentiert. Zunächst werden in Kapitel 2 die wichtigsten theoretischen und experimentellen Grundlagen der in dieser Arbeit verwendeten Messmethoden vorgestellt, während das Kapitel 3 einen kurzen Überblick über den aktuellen Wissensstand der Physik verdünnter Nitride gibt. In Kapitel 4 werden Untersuchungen zur transienten Dynamik der optischen Verstärkung sowohl in konventionellen III-V-Halbleitern als auch (GaIn)(NAs)-Heterostrukturen vorgestellt. Die zeitliche Entwicklung der optischen Verstärkung in Halbleitern ist ein

Gebiet, welches bislang wenig bearbeitet wurde. Dennoch ist es von entscheidender Bedeutung sowohl für die gezielte Entwicklung neuer Laserstrukturen als auch für das allgemeine Verständnis von Ladungsträgerdynamiken bei hohen Dichten. Ein solches Verständnis erlaubt die vertiefte theoretische Beschreibung und damit auch das zielgerichtete Design zukünftiger Halbleiterlaserstrukturen. Der Vergleich des Materialsystems (GaIn)(NAs) mit konventionellen (GaIn)As-Heterostrukturen erlaubt dabei die Evaluierung der grundsätzlichen dynamischen Eigenschaften dieser neuen Materialien im Hinblick auf bisherige Konzepte für Laserstrukturen. Das angewandte Verfahren der differentiellen Transmissionsspektroskopie gibt dabei einen direkten Zugriff auf die Entwicklung des optischen Materialgewinns auf Piko- und Nanosekundenzeitskalen.

Das Kapitel 5 widmet sich dem Themengebiet der Halbleiterlaser auf Siliziumbasis. In ihm wird als vielversprechender Zwischenschritt zu diesem Ziel die Machbarkeit von Halbleiterlasern auf Grundlage von Galliumphosphid untersucht. Galliumphosphid ist ein indirekter III-V-Halbleiter von dem bekannt ist, dass er in hoher Qualität auf Silizium epitaktisch abgeschieden werden kann. Ein GaP-basierter Laser ist also ein Laser, der sich auf Silizium übertragen lassen könnte. Messungen zur Lichtverstärkung und Laseraktivität bei optischer Anregung in derartigen GaP-Heterostrukturen werden diskutiert.

Kapitel 6 stellt erste Untersuchungen zur differentiellen Transmission von Multi-quantenfilmstrukturen vor, deren Quantenfilme in sogenannten Braggstrukturen angeordnet sind. Diese Experimente geben erste Einblicke auf Einflüsse optischer Anregungen auf die Transmission von Halbleiterheterostrukturen im Falle starker Lichtkopplung, ein Gebiet das bislang noch nicht Thema theoretischer Untersuchungen war.

Im anschließenden Kapitel 7 wird die Ladungsträgerdynamik von diversen verdünnten Nitriden weiter beleuchtet. Der Schwerpunkt liegt hier auf den Unterschieden und Gemeinsamkeiten, die zwischen den Materialsystemen Ga(NAs) und (GaIn)(NAs) bestehen. Das angewandte Verfahren der differentiellen Transmissionsspektroskopie erlaubt dabei auch die Untersuchung von Proben, die den gebräuchlicheren Verfahren der zeitaufgelösten Photolumineszenz nicht zugänglich sind. Die Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung und einem Ausblick in Kapitel 8.

2 Experimentelle und theoretische Grundlagen

2.1 Transiente Absorptionsspektroskopie

Eine Messung der zeitlichen Entwicklung der Absorption eines Halbleiters ist mittels der transienten Absorptionsspektroskopie, auch als Anrege-Abfrage- oder *Pump-Probe*-Spektroskopie bekannt, möglich [Sha96, Muk95, Hau]. Bei dieser Technik misst man die durch eine optische Anregung hervorgerufene Änderung der Transmission durch eine zu untersuchende Probe. Es handelt sich dementsprechend um ein differenzielles Verfahren. Es ist ein hervorragendes Mittel, direkt Informationen über Ladungsträgerdynamiken und Besetzungen von Zuständen zu gewinnen, da die optischen Eigenschaften eines Festkörpers von seiner elektronischen Struktur bestimmt sind. Im Folgenden sollen das Prinzip der spektral aufgelösten transienten Absorptionsspektroskopie dargelegt und der im Rahmen dieser Arbeit verwendete Versuchsaufbau vorgestellt werden.

Das Messprinzip

Durchdringt Licht mit einer anfänglichen Leistung P_0 eine zu untersuchende Probe, so wird es durch Absorptionsprozesse innerhalb der Probe und Reflexionen an Grenzschichten, insbesondere der Probenoberfläche, geschwächt. Unter Vernachlässigung von Mehrfachreflexionen ergibt sich die transmittierte Leistung P_T zu

$$P_T = P_0 \cdot e^{-\alpha L} \cdot \prod_{i=1}^k (1 - R_i) . \quad (2.1)$$

Hier ist α der Absorptionskoeffizient, L die Dicke des absorbierenden Materials und R_i das Reflexionsvermögen der einzelnen Grenzschichten. Wird die Probe zusätzlich optisch angeregt, kommt es bei hinreichend großer Anregungsdichte zu einer Änderung der Transmission, da sich sowohl der Absorptionskoeffizient als auch der

Brechungsindex und damit die Reflexion ändern. Die transmittierte Leistung P_{TP} in diesem Falle beträgt dann

$$P_{TP} = P_0 \cdot e^{-(\alpha+\Delta\alpha)L} \cdot \prod_{i=1}^k (1 - (R_i + \Delta R_i)) . \quad (2.2)$$

Wenn sich nur die Absorption ändert und R konstant bleibt, vereinfacht sich Gleichung 2.2 zu

$$P_{TP} \approx P_0 \cdot e^{-(\alpha+\Delta\alpha)L} \cdot \prod_{i=1}^k (1 - R_i) . \quad (2.3)$$

Misst man die transmittierte Leistung durch die zu untersuchende Probe sowohl im angeregten als auch im nichtangeregten Fall, so kann die Größe $-\Delta\alpha L$ wie folgt bestimmt werden.

$$\frac{P_{TP}}{P_{T0}} = \frac{e^{-(\alpha+\Delta\alpha)L}}{e^{-\alpha L}} \quad (2.4)$$

$$\implies -\Delta\alpha L = \ln \left(\frac{P_{TP}}{P_{T0}} \right) . \quad (2.5)$$

Eine Messung der zeitlichen Entwicklung des differentiellen Transmissionssignals ist möglich, wenn sowohl Anrege- und Abfragestrahl in Form kurzer Lichtpulse vorliegen. Durch den Anregeimpuls wird ein $-\Delta\alpha L$ induziert, welches mit der Zeit über Rekombinations- und Relaxationsprozesse wieder abgebaut wird. Die Schwächung des Abfrageimpulses hängt in diesem Fall davon ab, mit welcher Zeitverzögerung zur Anregung er auf der Probe auftrifft. Transiente Daten können nun gewonnen werden, indem mehrere differentielle Spektren mit unterschiedlicher Zeitverzögerung aufgenommen werden. Die erreichbare Zeitauflösung ist durch die Impulsdauer des Abfragestrahls und die Genauigkeit, mit der die Verzögerung zwischen Anregung und Abfrage eingestellt werden kann, begrenzt. Für die Untersuchung der zeitlichen Dynamik ist es hierbei wichtig, dass die Impulsdauern kurz gegenüber den charakteristischen Relaxationszeiten des untersuchten Systems sind. Man nutzt daher vorzugsweise Ultrakurzpulslaser, welche Impulsdauern von einigen Pikosekunden bis hinab zu 10 fs bieten. Diese sind nötig, da sich Ladungsträgerdynamiken in Molekülen und Festkörpern auf diesen Zeitskalen bewegen.

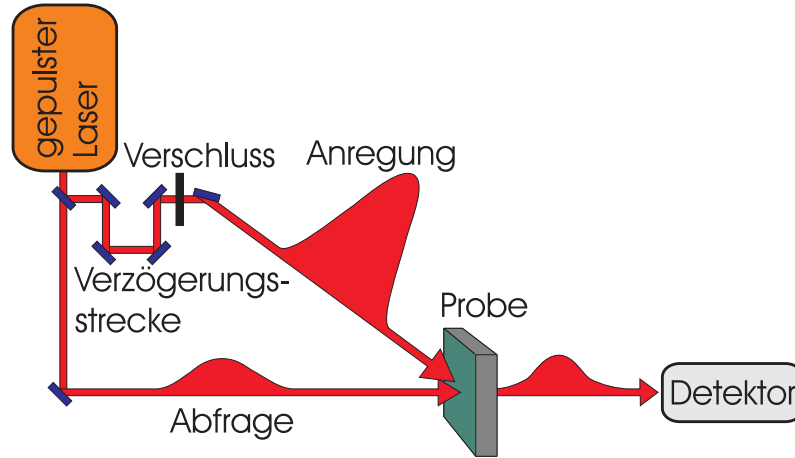


Abbildung 2.1: *Prinzip der Anrege-Abfrage-Spektroskopie. Ein Laser liefert kurze Lichtimpulse, die über einen Strahlteiler in zwei Arme aufgeteilt werden. Der intensivere Strahl wird zur Anregung der Probe, der schwächere zur Abfrage derer Eigenschaften verwendet. Eine Verzögerungsstrecke erlaubt es, den Zeitversatz zwischen den Impulsen zu variieren.*

Differenzielle Transmission

In Gleichung 2.3 wird davon ausgegangen, dass die Änderungen der Transmission im Wesentlichen auf die Absorptionsänderungen zurückzuführen sind, das Reflexionsvermögen aber gleich bleibt. Diese Annahme ist nicht notwendigerweise für alle Proben und Anregungsbedingungen gleichermaßen gültig und eine Auswertung nach Gleichung 2.5 würde falsche Werte liefern. Sofern man die Größe ΔR nicht getrennt bestimmen kann, kann es daher sinnvoller sein, die differenzielle Transmission $\Delta T/T_0$ als Messgröße heranzuziehen. Diese beschreibt die Änderung ΔT der Transmission $T_0 = P_{T0}/P_0$ durch die optische Anregung, macht aber im Gegensatz zu Gleichung 2.5 keine Annahme über die direkte physikalische Ursache dieser Änderung. Definiert wird sie als:

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{T_P - T_0}{T_0} = \frac{P_{TP} - P_{T0}}{P_{T0}} . \quad (2.6)$$

Man gibt diese Größe häufig an, wenn man primär an zeitlichen Entwicklungen und spektralen Positionen des differenziellen Signals interessiert ist, nicht aber an dessen absoluter Größe.

Prinzipieller Messaufbau

Ein schematischer Aufbau eines Anrege-Abfrage-Experiments ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Ein geeignetes Lasersystem liefert ultrakurze Impulse, die über einen Strahlteiler in zwei Teile aufgespalten werden. Der stärkere Anregestrahl (Pump) wird auf die zu untersuchende Struktur fokussiert und erzeugt hier ein $-\Delta\alpha L$. Über eine Verzögerungsstrecke kann die optische Wegstrecke variiert und so der exakte Zeitpunkt des Eintreffens des Anregeimpulses eingestellt werden. Ein mechanischer Verschluss (Shutter) erlaubt, den Anregestrahl ein- und auszuschalten. Die Leistung des Abfrage-Impulses wird nach der Probe mittels eines geeigneten Detektors gemessen und das differenzielle Signal nach Gleichung 2.5 oder 2.6 berechnet. Da die Zeitauflösung allein durch die verwendeten Impulsdauern und die Genauigkeit der Verzögerungsstrecke gegeben ist, ist es ausreichend, einen zeitintegrierenden Detektor zu verwenden. Eine Messung des zeitlichen Verlaufs der einzelnen Impulse ist nicht notwendig.

Spektrale Auflösung

Bei einem Aufbau wie in Abbildung 2.1 dargestellt erfolgt die Anregung und die Abfrage bei ein- und derselben Wellenlänge. Der Absorptionskoeffizient α ist aber eine Funktion der Wellenlänge. Daher ist es häufig wünschenswert, $-\Delta\alpha L$ auch bei anderen Wellenlängen als derjenigen der Anregung zu messen. Hierzu gibt es eine Vielzahl von Möglichkeiten. Ist man nur an einem kleinen Bereich rund um die Anregungswellenlänge interessiert, reicht oft bereits die durch die Fourier-Transformation gegebene spektrale Breite eines ultrakurzen Lichtimpulses aus. So ist beispielsweise ein 100fs Impuls bei einer Zentralwellenlänge von 800nm ist bereits etwa 8nm breit. Je kürzer der Impuls desto breiter auch das Spektrum. Alternativ kann man auch die Anrege- und Abfrageimpulse über nichtlineare optische Effekte gegeneinander verstimmen. Für eine größere Verstimmbbarkeit bieten sich neben einfacher Frequenzverdopplung oder -verdreifachung für den Anregepuls optische parametrische Verstärker (OPA¹) oder Oszillatoren (OPO²) an, die eine kontinuierliche Variation der Wellenlänge ermöglichen und so die Bestimmung der Größe $-\Delta\alpha L$ in einem breiten Spektralbereich erlauben. Alternativ kann man auch miteinander synchronisierte Laser gleicher Repetitionsrate aber unterschiedlicher Wellenlänge verwenden.

Die in dieser Arbeit verwendete Methode, differenzielle Spektren zu erhalten, ist die *Weißlicht-Anrege-Abfrage-Spektroskopie*. Bei dieser nutzt man an Stelle ei-

¹engl. für *Optical Parametric Amplifier*

²engl. für *Optical Parametric Oscillator*

nes Laserimpulses ein wesentlich breiteres *Weißlicht-Superkontinuum*. Dieses wird über Selbstphasenmodulation (SPM) aus dem Abfragestrahl erzeugt [Eic93]. Die SPM beruht auf dem nichtlinearen optischen Kerr-Effekt, welcher besagt, dass der Brechungsindex n eines transparenten Mediums intensitätsabhängig ist. Er ist in erster Näherung gegeben durch:

$$n = n_0 + n_2 \cdot I . \quad (2.7)$$

n_2 ist der sogenannte Kerr-Koeffizient und n_0 der Brechungsindex für kleine Intensitäten. Bei einem kurzen, intensiven Laserimpuls ändert sich damit der Brechungsindex während des Impulses. Dieses führt zu einer zeitabhängigen Phase und der Impuls moduliert sich eigenständig. Es kommt zu einer Schwankung der momentanen Frequenz des Impulses um die Zentralfrequenz und damit zu einer Verbreiterung des ursprünglichen Spektrums des Impulses. Die Breite eines solches Spektrums kann dabei bis zu mehreren μm betragen. In Abbildung 2.2 ist exemplarisch ein solches Weißlichtspektrum gezeigt, das durch Fokussierung von 120fs Laserimpulsen bei 800nm auf einen 0,5 mm dicken Saphirkristall erzeugt wurde.

2.2 Experimentelle Realisierung

Der in dieser Arbeit verwendete Aufbau für transiente Absorptionsmessungen ist in Abbildung 2.3 schematisch dargestellt. Basis ist ein regeneratives Verstärkersystem der Firma Spectra-Physics. Es liefert Laserimpulse von ca. 120 fs voller Halbwertsbreite (FWHM³) bei einer Repetitionsrate von 1 kHz in einem Wellenlängenbereich von 750 bis 850nm. Die mittlere Ausgangsleistung bei 800 nm beträgt etwa 750 bis 800 mW, also 750 bis 800 μJ pro Impuls. Unter Berücksichtigung der Impulsdauer ergeben sich damit Spitzenleistungen im Gigawattbereich. Über ein dünnes Glaspplättchen wird der Strahl in zwei Teile aufgespalten, die dann den Anrege- bzw. den Abfragestrahl bilden.

Der wesentlich stärkere Abfragestrahl wird in einem OPA des Typs TOPAS⁴ der Firma Lightconversion eingekoppelt. Er konvertiert über das Prinzip der Parametrischen Verstärkung den eingehenden Strahl mit einer Wellenlänge von 800 nm in zwei Strahlen unterschiedlicher Wellenlänge. Für die Wellenlängen dieser beiden Strahlen, *Signal* und *Idler* genannt, gilt die Beziehung

$$\frac{1}{800 \text{ nm}} = \frac{1}{\lambda_{\text{Signal}}} + \frac{1}{\lambda_{\text{Idler}}} , \quad (2.8)$$

³engl. für *Full Width at Half Maximum*

⁴**T**ravelling Wave **O**ptical **P**arametric **A**mplifier of **S**uperfluorescence

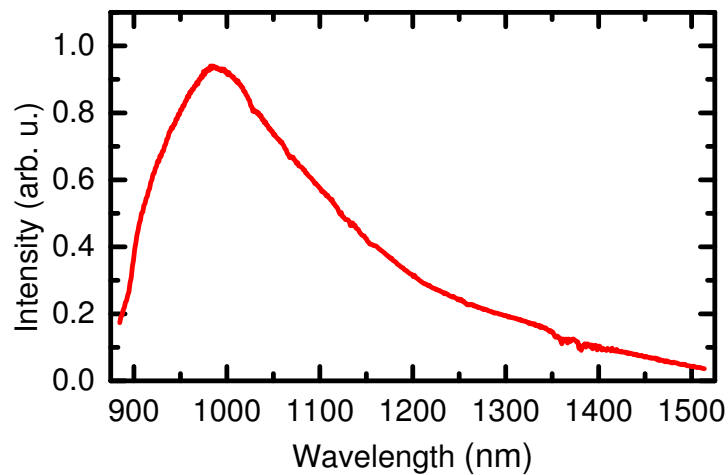


Abbildung 2.2: Weißlichtspektrum erzeugt durch einen 120fs Laserimpuls bei 800nm in einem Saphirkristall. Die Energie pro Impuls beträgt etwa $0,5\mu\text{J}$. Es zeigt sich ein breites Spektrum mit Komponenten bis über 1500nm. Der Einbruch der Intensität unterhalb 1000nm ist durch einen absorptiven Kantenfilter Schott RG1000 im Strahlengang bedingt. Im sichtbaren Bereich sind mit bloßem Auge sämtliche Farben zu erkennen bis hin zum Blau-Violetten.

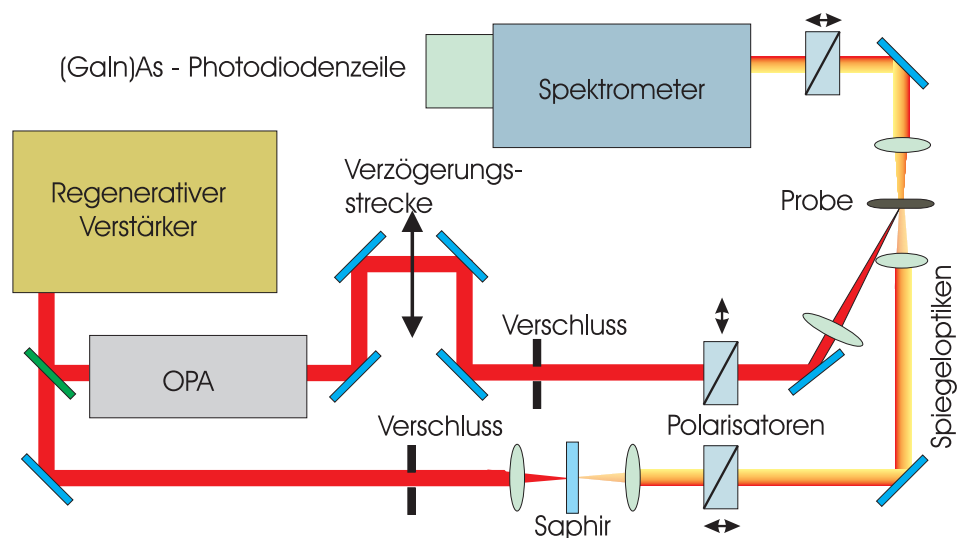


Abbildung 2.3: Versuchsaufbau für transiente Absorptionsmessungen.

da die zur Wellenlänge invers proportionale Photonenenergie in Summe erhalten bleiben muss. Beide Strahlen sind linear und senkrecht zueinander polarisiert. Es ist Konvention, den Strahl mit der kürzeren Wellenlänge hierbei als *Signal* zu bezeichnen. Der Verstimmbereich des TOPAS liegt kontinuierlich zwischen 1120 nm

bis 1600 nm für den *Signal*-Strahl und 1600 nm bis 2700 nm für den *Idler*-Strahl. Darüberhinaus ist es mittels eines zusätzlichen BBO⁵-Kristalls möglich, eine Frequenzverdopplung (SHG⁶) eines der beiden Strahlen oder aber eine Summenfrequenzbildung (SFG⁷) des *Idlers* -Strahls mit dem ursprünglichen Laser durchzuführen. Hierdurch steht mit Ausnahme eines kleinen Fensters um 1120 nm ein kontinuierlicher Verstimmbereich von 565 nm bis 2700 nm zur Verfügung. Dieses erlaubt die Anregung verschiedener zu untersuchender Proben bei definierbaren Wellenlängen. Da *Signal* und *Idler* den TOPAS kolinear verlassen, werden diese über Polarisatoren voneinander getrennt.

Der Anregestrahл durchläuft zunächst eine optische Verzögerungsstrecke und wird dann über eine Linse von 10 cm bis 30 cm Brennweite auf die Probe fokussiert. Die Größe des Anregeflecks beträgt hierbei je nach Experiment zwischen 20 μm und 300 μm FWHM. Die Verzögerungsstrecke ist über einen Retroreflektor realisiert, der auf einen schrittmotorgetriebenen 1m-Lineartisch der Marke Luge LM von Parker-Hannifin montiert ist. Eine microstepping-fähige Unidex11 der Firma Aerotech erlaubt die Positionierung des Retroreflektors mit einer Schrittweite von 125 nm, entsprechend einer inkrementellen Zeitverzögerung der Lichtimpulse von etwa 0,85 fs.

Der Abfragestrahl wird zunächst mit einer Leistung von etwa 0,5 mW auf einen Saphirkristall fokussiert und so ein breites *Weißlicht-Superkontinuum* erzeugt. Das nach dem Saphir stark divergente Abfragelicht wird mittels sphärischer Hohlspiegel zunächst kollimiert und dann auf die Probenoberfläche fokussiert. Die Fokusgröße ist hier deutlich kleiner als die des Anregestrahls, um eine inhomogene Anregungsdichte über das Profil des Abfragestrahls zu verhindern. Mittels geeigneter Kanten- und Grauglasfilter wird das Signal soweit abgeschwächt, dass es zu keinen unerwünschten Anregungen der Probe oder etwaigen nichtlinearen Effekten kommt. Um störende Reflexionen der Probenoberfläche und insbesondere Fabry-Perót-Moden zu unterdrücken, kann die Probe gegebenenfalls bezüglich des Anregestrahls im Brewsterwinkel justiert werden. Allerdings führt dies zu einer geringfügigen Verschlechterung der zeitlichen Auflösung, da der Impuls auf Grund der räumlichen Ausdehnung nicht an allen Stellen des Fokus simultan auf die Probe auftrifft.

Das transmittierte Licht wird dann mittels achromatischer Linsen eingesammelt und in einem 50cm-Gitterspektrometer Acton500i der Firma Roper-Scientific spektral aufgelöst. Hierzu stehen Gitter zwischen 80 l/mm und 900 l/mm zur Verfügung. Als Detektor wird eine (GaIn)As-Photodiodenzeile mit 512 Pixeln von je 50 μm

⁵ β -Bariumborat, chem. $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$

⁶engl. für *Second-Harmonic Generation*

⁷engl. für *Sum-Frequency Generation*

Breite verwendet, die eine hohe Sensitivität von 900 nm bis 1650 nm bietet. Für Anwendungen bei kürzeren Wellenlängen kann alternativ auch eine Silizium-CCD⁸ genutzt werden. Um die Probe auch innerhalb des untersuchten Spektralbereichs anregen zu können, sind Anrege- und Abfragestrahl senkrecht zueinander polarisiert. Mittels eines Glan-Thompson- oder Glan-Laser-Polarisators wird eventuelles Streulicht aus dem Anregestrahl vor dem Spektrometer in der Detektion unterdrückt.

Die verschiedenen für die Errechnung der Größe $-\Delta\alpha L$ notwendigen Spektren können durch selektives Blockieren der beiden Strahlen über mechanische Shutter gemessen werden. Die Belichtungszeit der Einzelspektren beträgt üblicherweise zwischen 100 ms und 200 ms. Da das *Weißlicht-Superkontinuum* relativ anfällig für Schwankungen ist, wird die Messgröße $-\Delta\alpha L$ mehrmals bestimmt und dann gemittelt. Üblicherweise werden 20 bis 60 Spektren aufgenommen. Es läßt sich damit eine Genauigkeit von etwa $5 \cdot 10^{-3}$ erreichen, entsprechend einer relativen Änderung des transmittierten Signals von 0,5 %. Die Messzeit beträgt zwischen einer halben und drei Minuten pro Zeitschritt, so dass die komplette Messung einer Transienten typischerweise 30 Minuten bis 2 Stunden in Anspruch nimmt.

Zusätzlich notwendige lineare Absorptionsspektren für die Bestimmung der zeitaufgelösten optischen Verstärkung können ebenfalls in diesem Aufbau bestimmt werden. Dazu wird das Weißlichtspektrum jeweils mit und ohne Probe im Strahlengang gemessen. Alternativ wird ein Absorptionsspektrum in einem anderen Aufbau bestimmt, bei dem das Licht einer Halogenlampe zunächst in einem Monochromator spektral zerlegt und dann die Transmission dieses Lichts durch die Probe mittels eines Germaniumdetektors und eines Lock-In-Verstärkers bestimmt wird.

2.3 Datenkorrekturen

Hintergrund und Photolumineszenz

In einem realen Experiment stellt man fest, dass die Ergebnisse nach Gleichung 2.5 dadurch verfälscht werden, dass im Detektor nicht ausschließlich das Licht des Abfragestrahls detektiert wird. Auch unerwünschtes Streulicht aus dem Anregestrahl oder Licht aus der Umgebung kann in den Detektor gelangen, was zu einem Hintergrundsignal führt. Selbst wenn dieses vollständig eliminiert wird, weist die Photodiodenzeile noch einen sogenannten Dunkelstrom auf, der ebenfalls ein endliches Hintergrundsignal P_{BG} liefert. Hinzu kommt, dass der Anregestrahl in der Probe

⁸engl. für *Charge-Coupled Device*

Photolumineszenz hervorrufen kann, die ebenfalls mit einer zusätzlichen Leistung P_{PL} im Detektor wahrgenommen wird. Diese störenden Hintergrundsignale müssen bei der Berechnung der differentiellen Absorption berücksichtigt werden. Sie werden gemessen, indem man das Signal des Detektors ohne das Weißlicht aufzeichnet. Je nachdem, ob man dabei den Anregestrahle ein- oder ausschaltet, erhält man so P_{PL} und P_{BG} . Gleichung 2.5 ist mit Hilfe dieser Hintergrundspektren wie folgt zu modifizieren

$$-\Delta\alpha L = \ln \left(\frac{P_{TP} - P_{PL}}{P_{T0} - P_{BG}} \right) . \quad (2.9)$$

Chirp

Das verwendete *Weißlicht-Superkontinuum* zeichnet sich auf Grund seiner Erzeugung im Allgemeinen durch einen zeitlichen *Chirp* aus. Betrachtet man nur einen spektral engen Bereich, so erscheint das Weißlicht weiterhin als ein kurzer Lichtimpuls mit einer zeitlichen Länge, die der des erzeugenden Laserimpulses vergleichbar ist. Spektral integriert ist der Impuls jedoch deutlich länger und die momentane Zentralwellenlänge bzw. -frequenz verschiebt sich innerhalb der Impulsdauer. Daher kommt auch die Bezeichnung *Chirp* (engl. zirpen). Für ein DTS-Experiment bedeutet dies, dass verschiedene Wellenlängen des Abfragelichts zu unterschiedlichen Zeiten auf der Probe ankommen. Dadurch wird die Interpretation transientser Spektren erschwert, da je nach Ausprägung des Chirps und der betrachteten Zeitskalen verschiedene Stellen im Spektrum verschiedene Verzögerungszeiten zwischen der Abfrage und der Anregung repräsentieren. Gegebenenfalls muß dieser *Chirp* also gemessen und numerisch aus den Daten heraus korrigiert werden.

Eine Messung des Chirps erfolgt, indem man die induzierte Absorption des Weißlichts in einem Material betrachtet, welches in dem zu untersuchenden Spektralbereich transparent ist für Einphotonenprozesse, nicht aber für Zweiphotonenprozesse. In diesem Fall kann ein Elektron durch ein Photon aus dem Anregestrahle vorübergehend in einen virtuellen Zustand und dann durch ein weiteres Photon aus dem Abfragestrahl in einen realen Zustand angeregt werden. Die Lebensdauer des virtuellen Zustands ist durch die Heisenberg'sche Unschärferelation gegeben und ist wesentlich kleiner als die in dieser Arbeit verwendeten Impulsdauern. Dementsprechend erfolgt eine induzierte Zweiphotonenabsorption nur bei einem direkten zeitlichen Überlapp von Anregung und Abfrage und liefert ein scharfes negatives Signal für $-\Delta\alpha L$. Das Maximum dieses Signals wird im Rahmen dieser Arbeit als $t = 0$ definiert. Es ist anzumerken, dass es sich bei der Zweiphotonenabsorption um einen nichtlinearen Effekt handelt, der von der Stärke des Abfragestrahls

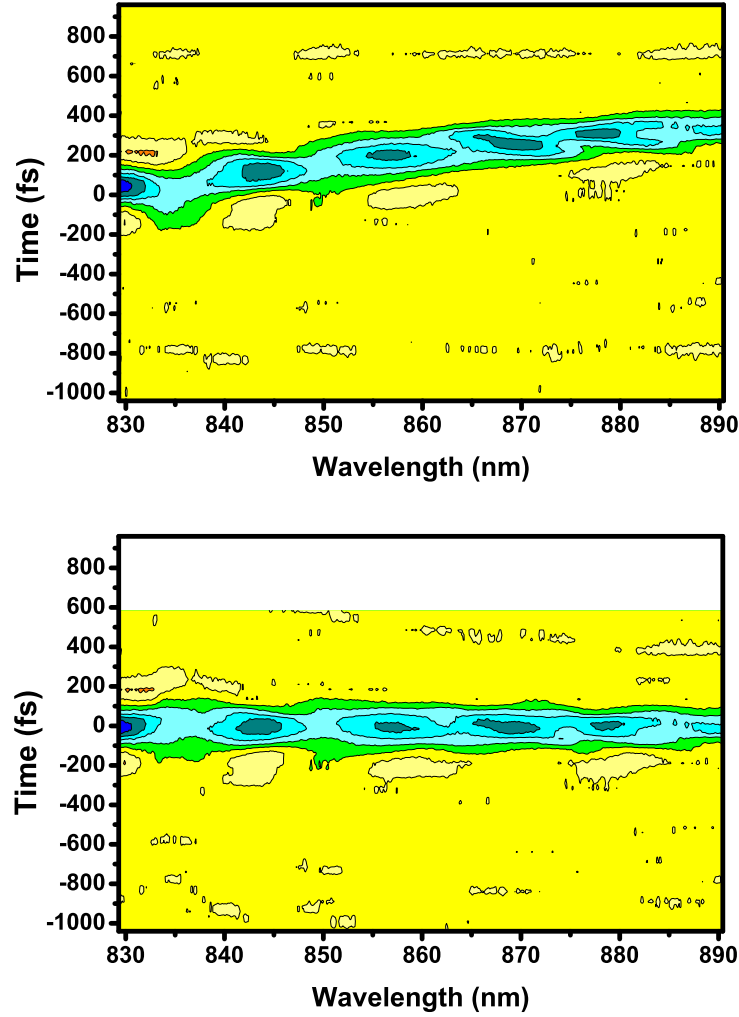


Abbildung 2.4: Induzierte Zweiphotonenabsorption in GaP.

Oben: Ein starkes negatives $-\Delta\alpha L$ -Signal wird bei zeitlichem Überlapp mit dem Anregeimpuls erzeugt, welcher als $t = 0$ definiert wird.

Unten: Das gleiche Spektrum nach einer numerischen Chirpkorrektur.

abhängt. Damit ist die Grundvoraussetzung, sich im Bereich der linearen Optik für den Abfragestrahl zu bewegen, für Gleichung 2.1 bzw. 2.2 nicht mehr gegeben. Eine Auswertung der Spektren ist daher in diesem Fall nur schwer möglich.

Substrateffekte

Eine Schwierigkeit bei der Interpretation der differentiellen Absorptionsspektren ergibt sich aus dem Umstand, dass die optische Anregung nicht nur die zu untersuchenden Quantenfilme sondern auch das Substrat beeinflussen kann. Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten GaAs-Substrate sind für Photonen mit Energien unterhalb der Bandlücke ($E_G=1,42$ eV) nominell transparent. Insofern sollte das Substrat nicht beeinflusst werden, wenn die optische Anregung bei Wellenlängen oberhalb von 870 nm stattfindet.

Führt man jedoch ein differentiell Absorptionsexperiment mit einem reinen GaAs-Substrat bei einer Anregungswellenlänge von 1075 nm durch, so sind auch unterhalb dessen Bandkante deutliche induzierte Signale zu beobachten. Wie in Abbildung 2.5 zu erkennen, setzt sich diese Antwort im Wesentlichen aus zwei Anteilen zusammen. Der erste Teil ist eine induzierte Zweiphotonenabsorption während des Überlapps von Anrege- und Abfrageimpuls, wie bereits in Abschnitt 2.1 erläutert. Der zweite Signalanteil besteht in einem negativen $-\Delta\alpha L$ -Beitrag und ist ausschließlich bei höheren Anregungsdichten zu beobachten (vergl. auch Abb. 2.5). Mögliche Ursachen für diesen Effekt gibt es mehrere: Zum einen werden Ladungsträger im Substrat durch Zweiphotonenabsorption angeregt, die dann von langlebigen Störstellenzuständen eingefangen werden und eine induzierte Absorption im Substrat bewirken. Weiterhin kann der Anregestrahl auf Grund seiner hohen Intensität eine thermische Linse im Substrat bewirken, welche die Einkoppeleffizienz des Abfragestrahls in die Detektion verschlechtert und so ebenfalls ein negatives differentiell Signal erzeugt. Damit geht einher, dass anregungsinduzierte Änderungen des Brechungsindex zu einer Modifikation der Reflexion führen. Ebenfalls weist das Substrat einen so genannten Bandkantenausläufer durch Unordnungen und Verunreinigungen zu größeren Wellenlängen bzw. geringeren Energien hin auf. Dieser bewirkt eine geringe Restabsorption in der Größenordnung von 1 cm^{-1} [Bro]. Eine solche Absorptionskonstante ist zwar viel kleiner als die typischen Absorptionskonstanten oberhalb der Bandkante, welche üblicherweise im Bereich 10^4 cm^{-1} liegen [Bro], aber dafür ist das Substrat auch um etwa drei Größenordnungen dicker als die Gesamtdicke der Quantenfilme, die hier typischerweise bei ca. 100 nm liegt. Damit unterliegt das Substrat natürlich auch photoinduzierten Effekten, die im Experiment detektiert werden können.

Real misst man dementsprechend also nicht direkt die Größe $-\Delta\alpha L$ der zu untersuchenden Struktur, sondern ein $-\Delta\alpha L|_{eff}$, welches auch die verschiedenen Substratbeiträge $-\Delta\alpha_{Substrat} L_{Substrat}$ umfasst. Letzterer ist hierbei ein Sammelterm, der alle Effekte umfasst, die nicht auf die Quantenfilme zurückzuführen sind, selbst wenn es sich dabei nicht im eigentlichen Sinne um eine Absorption handelt. Sofern

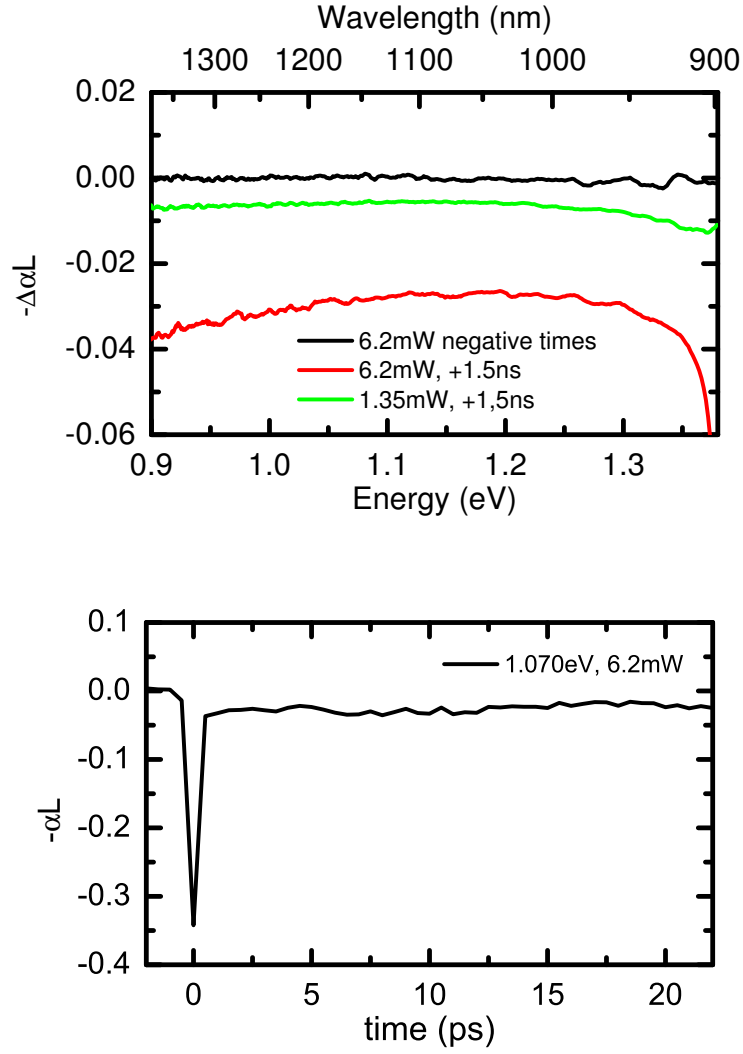


Abbildung 2.5: Differenzielle Absorption eines Galliumarsenid-Substrats unterhalb der Bandkante ($E_G(300\text{ K}) = 1,42\text{ eV}$) bei Raumtemperatur. Anregung bei 1075 nm / 1,15 eV.

man sich im Bereich der linearen Optik bewegt sind diese Beiträge additiv. Für die in dieser Arbeit untersuchten Quantenfilmstrukturen bedeutet dies

$$\begin{aligned}\alpha L|_{eff} &= -\alpha_{MQW} L_{MQW} + \alpha_{Substrat} L_{Substrat} , \\ -\Delta\alpha L|_{eff} &= -\Delta\alpha_{MQW} L_{MQW} - \Delta\alpha_{Substrat} L_{Substrat} .\end{aligned}\tag{2.10}$$

Für eine Auswertung müssen die unerwünschten Beiträge des Substrats vom ei-

gentlich relevanten Signal abgezogen werden. Hierbei kommt einem zu Hilfe, dass die substratbedingten Signalbeiträge, außer bei sehr großen Anregungsdichten im Bereich der Bandkante, nur sehr langsam mit der Wellenlänge variieren und die häufig scharfen Beiträge der Quantenfilme von diesem Signal deutlich unterscheidbar sind.

Korrekturen werden im Rahmen dieser Arbeit daher mittels einer linearen Inter- bzw. Extrapolation des Signals aus den Bereichen des Spektrums vorgenommen, an denen keine auf die Quantenfilme zurückzuführenden Effekte zu beobachten sind. Gerade im Bereich oberhalb von 1000 nm sind die Fehler dann relativ klein, sofern man keine extrem breiten Spektralbereiche betrachtet. Als hilfreich erweist sich, dass die Antwort des Substrats nur sehr langsam relaxiert. Die hiermit verbundenen Zeitskalen sind wesentlich länger als die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Zeiten, die bis maximal 3 ns reichen. Damit ist es gegebenenfalls möglich, das Signal zu langen Zeiten, bei denen die Quantenfilmantwort bereits abgeklungen ist, zusätzlich zur Korrektur oder zumindest zur Fehlerabschätzung heranzuziehen. Trotz der Korrekturen vermindern Substrateffekte die erreichbare Auflösung. Sind diese klein oder nicht vorhanden, sind Genauigkeiten für $-\Delta\alpha L$ bis 0,005 erreichbar. Treten diese Artefakte jedoch stärker zu Tage, so kann die mögliche Auflösung schnell 0,02 oder noch schlechter werden.

2.4 Deutung und Theorie der transienten Absorption

2.4.1 Physikalische Deutung der differentiellen Absorption

Die Größe $-\Delta\alpha L$ kann durch verschiedene physikalische Prozesse induziert werden, welche unterschiedliche Beiträge liefern. Beim Ausbleichen der Absorption handelt es sich um eine Verringerung der Absorption, die entweder durch das so genannte *Pauli-Blocking* oder über stimulierte Emission hervorgerufen wird. Ersteres ist durch den fermionischen Charakter von Elektronen und Löchern bedingt, da das Pauli-Prinzip besagt, dass keine zwei Fermionen den gleichen Quantenzustand besetzen können. Ist also ein energetisch hochliegender Zustand E_1 bereits auf Grund einer optischen Anregung besetzt, so kann aus einem Grundzustand E_0 heraus keine Anregung eines Ladungsträgers in diesen hinein mehr erfolgen. Bei der stimulierten Emission handelt es sich im Wesentlichen um die Umkehrung der Absorption: Ein Ladungsträger aus besagtem angeregten Zustand E_1 wird in den unbesetzten Grundzustand E_0 überführt, wenn er einem resonanten Lichtfeld der

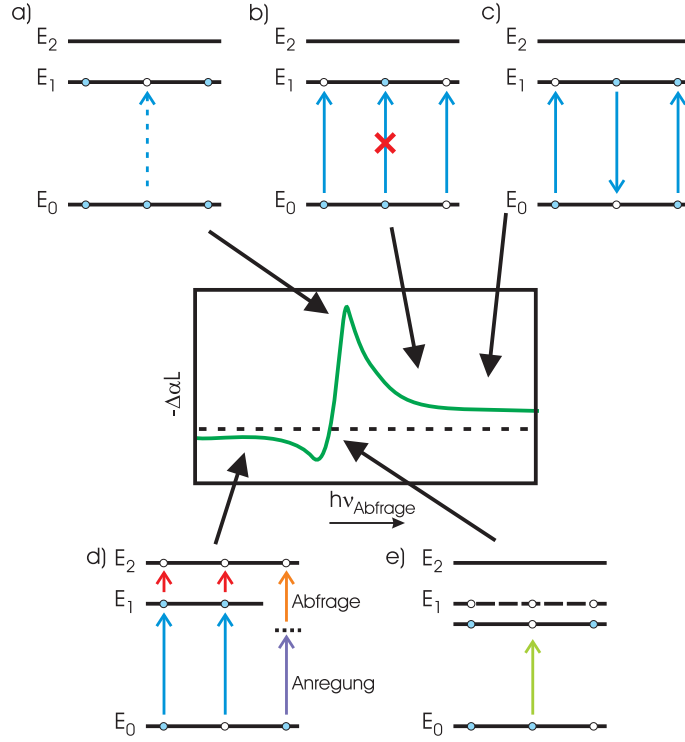


Abbildung 2.6: *Mechanismen der differentiellen Absorption. Pauli-Blocking b) und stimulierte Emission c) erzeugen ein positives $-\Delta\alpha L$, Photoabsorption und Zweiphotonenabsorption d) dagegen ein negatives. Renormalisierungseffekte e) führen zum Schieben von optischen Übergängen und können je nach Wellenlänge sowohl positive als auch negative Signale erzeugen. Unter bestimmten Umständen können auch Oszillatorstärken mit den Besetzungen von Zuständen verändert werden.*

Energie $\hbar\omega = E_1 - E_0$ ausgesetzt wird. Hierbei wird dem einwirkenden Lichtfeld ein Photon entsprechend der Übergangsenergie zugefügt und es somit verstärkt. Beide Prozesse erzeugen ein positives $-\Delta\alpha L$, erhöhen also die Transmission.

Induzierte Absorption ist hingegen ein Effekt, der eine negatives $-\Delta\alpha L$ -Signal bewirkt. Hierbei werden durch die optische Anregung der Probe zusätzliche Absorptionskanäle eröffnet. Man unterscheidet prinzipiell zwischen der photoinduzierten Absorption (PA) und der induzierten Zwei-Photonen-Absorption (TPA⁹). Bei der PA wird durch die Besetzung angeregter Zustände die Absorption in weitere Zu-

⁹engl. für *Two-Photon Absorption*)

stände ermöglicht. Liegt beispielsweise Zustand E_2 oberhalb von E_1 , so führt eine Besetzung von E_1 dazu, dass nun Licht der Energie $\hbar\omega = E_2 - E_1$ absorbiert werden kann, indem ein Elektron vom Niveau E_1 ins Niveau E_2 überführt wird. Bei der Zweiphotonenabsorption kommt es zu einer simultanen Absorption eines Photons aus dem Anrege- und dem Abfragestrahl. So können Anregungen in Zustände stattfinden, die über einen Einphotonenprozess energetisch nicht erreichbar wären. Bei einem zeitaufgelösten Experiment ist dies natürlich nur möglich, wenn sich Anrege- und Abfrageimpuls zeitlich überlappen. In Halbleitern kann weiterhin noch eine Bandkantenrenormalisierung auftreten. Es handelt sich dabei um einen Vielteilcheneffekt, der besagt, dass sich die Bandlücke eines Halbleiters bei hohen Ladungsträgerdichten verkleinert. Hinzu kommt, dass auf Grund von Besetzungen von Zuständen auch Oszillatorstärken von optischen Übergängen Änderungen erfahren können. Dies führt ebenfalls zu einer Änderung der Absorption. Eine schematische Übersicht über diese Effekte und ihre Auswirkungen auf ein differenzielles Absorptionsspektrum ist in Abbildung 2.6 zu finden.

Optische Verstärkung

Bei einem Laser hat man es im aktiven Medium nicht mit einer Absorption, sondern mit einer Verstärkung des Lichtfelds zu tun. Infolge einer Besetzungsinversion überwiegen stimulierte Emissions- die Absorptionsprozesse. Mathematisch entspricht dies einem negativen Absorptionskoeffizienten in der Gleichung 2.1. Dementsprechend ist die Bedingung für optische Verstärkung in der differentiellen Absorption

$$-\Delta\alpha L - \alpha L > 0. \quad (2.11)$$

Neben den differentiellen Spektren ist zusätzlich noch die Kenntnis des linearen Absorptionsspektrums notwendig, das gegebenenfalls in einer separaten Messung ermittelt werden muss. Es ist also möglich, mit der transienten Absorptionsspektroskopie die zeitliche Dynamik der optischen Verstärkungsspektren eines Lasers zu gewinnen.

Es ist zu beachten, dass bei diesem Verfahren die sogenannte *Materialverstärkung* $g(\lambda)$ gemessen wird. Diese ist von der *modalen Verstärkung* $G(\lambda)$ zu unterscheiden, die bei vielen anderen üblichen Verfahren, wie zum Beispiel der Hakki-Paoli-Methode[Hak73, Hak75] oder dem Strichlängenverfahren [Wan97], bestimmt wird. Diese hängen über den Einschluss- oder englisch Confinementfaktor Γ mittels der Relation

$$G(\lambda) = \Gamma g(\lambda) \quad (2.12)$$

zusammen. Γ beschreibt hierbei, inwieweit das Lichtfeld der Intensität $I(x, y)$ mit dem absorbierenden oder verstärkenden, aktiven Medium räumlich überlappt. Es gilt also

$$\Gamma = \frac{\int_{\text{aktiv}} dx dy I(x, y)}{\int_{-\infty}^{+\infty} dx dy I(x, y)}. \quad (2.13)$$

Wichtig ist der Einschlussfaktor vor allem bei der Bestimmung der optischen Verstärkung in Laserdioden. Bei diesen wird das Licht meist in einer Wellenleiterstruktur (z.B. SCH¹⁰ oder GRINSCH¹¹) geführt und ein beträchtlicher Teil des Lichtfelds propagiert in den transparenten Barrieren und kann folglich nicht absorbiert oder verstärkt werden. Die modale Verstärkung ist eine bauteilspezifische Größe. Ist man nur an den intrinsischen Materialeigenschaften des aktiven Mediums interessiert, so muss die räumliche Intensitätsverteilung $I(x, y)$ über die Maxwellgleichungen berechnet werden. Hierzu ist allerdings eine genaue Kenntnis der Brechungsindizes von aktivem Material und Barriere notwendig, was nicht immer gegeben ist und so die Auswertung erschwert bzw. unmöglich macht.

2.4.2 Theoretische Beschreibung der transienten Absorption

Die im vorigen Abschnitt genannten Effekte führen zu komplexen Spektren, die häufig nicht trivial interpretiert werden können, da eine direkte Zuordnung der Signaturen im Allgemeinen nicht eindeutig ist. Daher ist es nötig, diese gegebenenfalls mit berechneten Spektren zu vergleichen. Dieses erfordert eine theoretische Beschreibung der Absorption.

Absorption in der klassischen Elektrodynamik

Im Rahmen der klassischen Elektrodynamik wird die Wechselwirkung zwischen Licht und Materie über die Maxwellgleichungen beschrieben [Hec01, Eic93]. Diese stellen einen Zusammenhang zwischen der Polarisation $\vec{\mathcal{P}}(\omega)$ eines Mediums mit einem von außen einwirkenden elektrischen Feld $\vec{\mathcal{E}}(\omega)$ über der Suszeptibilität $\bar{\chi}(\omega)$

¹⁰engl. für *Separate-Confinement Heterostructure*

¹¹engl. für *Graded-Index Separate-Confinement Heterostructure*

her. Diese ist eine Eigenschaft des Mediums und ist im Allgemeinen eine tensorielle und von der Stärke des äußeren Felds abhängige Größe der Form:

$$\vec{\mathcal{P}}(\omega) = \bar{\chi}_1 \vec{\mathcal{E}}(\omega) + \left(\bar{\chi}_2 \cdot \vec{\mathcal{E}}(\omega) \right) \cdot \vec{\mathcal{E}}(\omega) + \left(\left(\bar{\chi}_3 \cdot \vec{\mathcal{E}}(\omega) \right) \cdot \vec{\mathcal{E}}(\omega) \right) \cdot \vec{\mathcal{E}}(\omega) + \dots \quad (2.14)$$

Betrachtet man nur isotrope dielektrische Medien und bleibt im Bereich der linearen Optik, so vereinfacht sich die Relation 2.14 zu der einfachen Form

$$\vec{\mathcal{P}}(\omega) = \chi_1 \vec{\mathcal{E}}(\omega) , \quad (2.15)$$

und es können einfache Lösungen der Maxwellgleichungen in Form gedämpfter Schwingungen gefunden werden

$$\vec{\mathcal{E}}(x, \omega) = \vec{\mathcal{E}}_0(\omega) \cdot \exp \left(-\frac{1}{2} \alpha(\omega) x + i n(\omega) k_x c_0 x \right) . \quad (2.16)$$

Die Größen $n(\omega)$ und $\alpha(\omega)$ sind hier der Brechungsindex bzw. Absorptionskoeffizient. Letzterer ist über die Relation

$$\alpha(\omega) = \frac{\omega}{n(\omega)} \text{Im} [\chi(\omega)] \approx \frac{\omega}{n_{\text{mittel}}} \text{Im} [\chi(\omega)] \quad (2.17)$$

mit der Suszeptibilität $\chi(\omega)$ verknüpft. Dies gilt prinzipiell auch für $n(\omega)$, allerdings ist dieser Term für gewöhnlich nur schwach von der Wellenlänge abhängig und kann häufig in guter Näherung als Konstante angenommen werden.

Eine Beschreibung transienter Absorptionsexperimente ist im Rahmen der klassischen Physik nur bedingt möglich, da die Suszeptibilität χ grundsätzlich nur als phänomenologische Größe aufgefasst wird, die jedoch nicht von der mikroskopischen Struktur der Materie abgeleitet werden kann. Eine Berechnung der linearen oder transienten Absorption erfordert also die Berechnung der makroskopischen Größe $\chi(\omega)$ aus einer mikroskopischen Quantentheorie.

Licht-Materie-Wechselwirkung in der Quantenmechanik

Von einem quantenmechanischen Standpunkt aus gesehen, wird die Wechselwirkung von Licht mit Materie über einen Wechselwirkungsterm im Hamiltonoperator \hat{H} beschrieben

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{l-m} . \quad (2.18)$$

In dieser Gleichung ist \hat{H}_0 der Material-Hamiltonoperator, der die verschiedenen Zustände bzw. Energiebänder des Systems beinhaltet, während \hat{H}_{l-m} die Wechselwirkung dieser Zustände mit dem Lichtfeld beschreibt. Ein äußeres elektrisches Feld $-\vec{\mathcal{E}}(t)$ greift hierbei an die Polarisation $\vec{\mathcal{P}}$ des Systems an. Daher ist die Licht-Materie-Wechselwirkung \hat{H}_{l-m} gegeben durch

$$\hat{H}_{l-m} = -\vec{\mathcal{E}}(t) \cdot \hat{\vec{\mathcal{P}}} \quad (2.19)$$

$$\hat{\vec{\mathcal{P}}} = e\hat{\vec{r}} . \quad (2.20)$$

Gemäß Gleichung 2.15 ist die Polarisation proportional der Suszeptibilität. Daher kann in einer semiklassischen Betrachtung der transienten Absorption die zeitliche Entwicklung der Suszeptibilität über die zeitliche Entwicklung des Erwartungswerts der Polarisation erfolgen, und es gilt

$$\Delta\alpha \propto \text{Im} \left[\langle \hat{\mathcal{P}}_{\text{pump}}(t) \rangle - \langle \hat{\mathcal{P}}_0 \rangle \right] . \quad (2.21)$$

Es zeigt sich, dass die Polarisation zusammen mit den Besetzungen der verschiedenen Zustände oder Bänder des Mediums ein System gekoppelter Differenzialgleichungen bildet, die simultan gelöst werden müssen. Dies kann an dieser Stelle jedoch nicht im Detail geschehen. Für eine ausführliche Abhandlung sei auf [Hau] hingewiesen. Als wichtiges Ergebnis zeigt sich, dass der Zerfall des $\Delta\alpha$ -Signals mit der der Population erfolgt. Dies unterstreicht die Bedeutung der Anrege-Abfrage-Spektroskopie, da sie die direkte Beobachtung von Ladungsträgerdynamiken quantenmechanischer Zustände erlaubt.

Halbleiterblochgleichungen

Bei einem Halbleiter erfolgt die Berechnung der Polarisation über die sogenannten Halbleiterblochgleichungen (SBE¹²) [Hau, Mei04].

¹²engl. für *Semiconductor Bloch-Equations* . Anmerkung: Die hier angegebene Form umfasst nur jeweils ein Leitungs- und Valenzband. Je nachdem welche Effekte man studiert, kann es nötig sein, die Gleichungen 2.22 auf mehrere Bänder zu erweitern.

$$\begin{aligned}
 \frac{dp_{\vec{k}}}{dt} &= -i\omega_{\vec{k}}p_{\vec{k}} - \Omega_{\vec{k}}[f_{e\vec{k}} + f_{h\vec{k}} - 1] + \left.\frac{dp_{\vec{k}}}{dt}\right|_{coll}, \\
 \frac{df_{e,\vec{k}}}{dt} &= i(\Omega_{\vec{k}}p_{\vec{k}}^* + \Omega_{\vec{k}}^*p_{\vec{k}}) + \left.\frac{df_{e,\vec{k}}}{dt}\right|_{coll}, \\
 \frac{df_{h,\vec{k}}}{dt} &= i(\Omega_{\vec{k}}p_{\vec{k}}^* + \Omega_{\vec{k}}^*p_{\vec{k}}) + \left.\frac{df_{h,\vec{k}}}{dt}\right|_{coll}.
 \end{aligned} \tag{2.22}$$

Diese verknüpfen den Erwartungswert der mikroskopischen Polarisation $\hat{p}_{\vec{k}} = |e, \vec{k}\rangle\langle h, \vec{k}|$ mit den Besetzungen $f_{e,\vec{k}}$ und $f_{h,\vec{k}}$ von Zuständen im Leitungs- bzw. Valenzband in Form gekoppelter Differenzialgleichungen. $\hbar\omega$ und $\Omega_{\vec{k}}$ sind die renormalisierten Übergangsenergien bzw. Rabi-frequenzen

$$\hbar\omega = \hbar\omega' - \sum_{\vec{k}' \neq \vec{k}} V_{|\vec{k}-\vec{k}'|} (df_{e,\vec{k}'} + df_{h,\vec{k}'}) \tag{2.23}$$

$$\Omega_{\vec{k}} = \frac{\mu_{\vec{k}}}{\hbar} + \frac{1}{\hbar} \sum_{\vec{k}' \neq \vec{k}} V_{|\vec{k}-\vec{k}'|} p_{\vec{k}'} \tag{2.24}$$

welche von den Dipolmatrixelementen $\mu_{\vec{k}} = \langle h_{\vec{k}} | \hat{\mathcal{P}} | e_{\vec{k}} \rangle$ und den Coulomb-Wechselwirkungen $V_{|\vec{k}-\vec{k}'|}$ abhängen. Die mit $|_{coll}$ bezeichneten Terme sind Streuterme, die eine Reihe verschiedener Wechselwirkungen wie zum Beispiel Coulomb-Korrelationen der Ladungsträger untereinander, Wechselwirkungen mit Phononen und Intersubbandstreuung umfassen. Der Erwartungswert der makroskopische Polarisation $\mathcal{P}_{\vec{k}} = \langle \hat{\mathcal{P}}_{\vec{k}} \rangle$ wird dann mittels der Relation

$$\mathcal{P}_{\vec{k}} = \mu_{\vec{k}}^* p_{\vec{k}} + \mu_{\vec{k}} p_{\vec{k}}^* \tag{2.25}$$

aus der mikroskopischen Polarisation berechnet. Eine exakte theoretische Behandlung dieser Effekte ist numerisch äußerst aufwendig, so dass diese häufig durch phänomenologische Relaxationsraten abgehandelt werden [Yok89]. Allerdings gibt es auch Methoden, diese im Rahmen einer mikroskopischen Theorie exakt zu behandeln [Sch05a, Thr04, Ros94]. Eine Lösung der Halbleiterblockgleichungen ist nur noch numerisch möglich, analytische Lösungen für physikalisch sinnvolle Systeme existieren nicht. Dennoch ist die im vorigen Abschnitt genannte Eigenschaft, dass die Größe $\Delta\alpha(\omega, t)$ über die Population zerfällt, nach wie vor gültig. Bei den SBE handelt es sich um eine semiklassische Behandlung der Lichtabsorption: Die

energetischen Zustände des Systems und die Dynamik der Ladungsträgerbesetzungen werden quantenmechanisch behandelt, das Lichtfeld jedoch wird weiter als klassisch angenommen.

3 Grundlagen der verdünnten Nitride

Unter verdünnten Nitriden versteht man eine Klasse von III-V-Verbindungshalbleitern, bei denen ein kleiner Prozentsatz des Gruppe-V Elements des Ausgangsmaterialsystems durch Stickstoff substituiert ist. In diesen Materialsystemen führt der Stickstoffeinbau zu einer Reihe von bemerkenswerten, konzentrationsabhängigen Änderungen der optischen Eigenschaften, die die verdünnten Nitride zu einer äußerst vielversprechenden Komponente für die Realisierung von optischen Halbleiterbauelementen wie Laserdioden oder Solarzellen machen. Zugleich sind sie auch von fundamentalem physikalischem Interesse. Obwohl einige verdünnte Nitride wie Ga(NP) bereits seit den Siebzigerjahren bekannt sind, hat die Entdeckung weiterer verdünnter Nitride dieses Forschungsgebiet seit Mitte der Neunzigerjahre stark vorangetrieben. Im Folgenden soll ein kurzer Überblick ihre Eigenschaften und Möglichkeiten beschrieben werden. Das Hauptaugenmerk liegt dabei insbesondere auf den Materialsystemen Ga(NAs) und (GaIn)(NAs) und den Unterschieden, die sie gegenüber konventionellen III-V-Legierungshalbleitern aufweisen.

3.1 Konventionelle III-V-Verbindungshalbleiter

Für Anwendungen im Bereich der Optoelektronik ist es notwendig, die Emissionswellenlänge von Bauelementen wie Laser- und Leuchtdioden beziehungsweise die Absorptionskanten bei Photodetektoren und Solarzellen den jeweiligen Erfordernissen anzupassen. Obwohl eine Vielzahl verschiedener Halbleitermaterialien existiert, deren Bandlücken sich vom ultravioletten Bereich bis in das Infrarote erstrecken, sind viele für Anwendungen interessante Spektralbereiche mit ein- oder zweikomponentigen Systemen nicht zugänglich. Es kommt hinzu, dass aus technologischen und ökonomischen Aspekten Lösungen auf Basis gut bekannter und gut beherrschbarer Basissysteme zu bevorzugen sind. Im Bereich der emittierenden Optoelektronik sind dies vor allem Galliumarsenid und Indiumphosphid,

deren Bandlückenenergie bei Raumtemperatur etwa 1,4 eV beträgt. Um in andere Spektralbereiche vorzustößen, werden diese Materialien mit anderen Elementen legiert, d.h. ein Teil der Gruppe-III- und/oder Gruppe-V-Atome wird durch ein anderes Material der selben Hauptgruppe ersetzt. Hierdurch ändern sich sowohl die Bandlücke als auch die Gitterkonstante kontinuierlich, bis die Eigenschaften des komplett substituierten Materialsystems erreicht sind.

Ternäre III-V-Halbleitern können meist als eine Mischung zweier binärer Halbleiter angesehen werden und viele Eigenschaften des ternären Systems sind in guter Näherung eine Mischung der Eigenschaften der Ausgangssysteme. So kann die Gitterkonstante des Mischkristalls zumeist gut durch eine lineare Interpolation der Gitterkonstanten der beiden binären Komponenten angegeben werden, ein Verhalten, das als Vegard'sche Regel bezeichnet wird. So ergibt sich beispielsweise die Gitterkonstante $a_{(GaIn)As}$ von $Ga_{1-y}In_yAs$ als Funktion der Indiumkonzentration y einfach zu

$$a_{(GaIn)As} = y \cdot a_{GaAs} + (1 - y) \cdot a_{InAs} . \quad (3.1)$$

Wie in Abbildung 3.1 zu sehen, ist eine solche lineare Interpolation dagegen für die Bandlücke nicht immer eine gute Näherung. Die Abweichungen vom linearen Fall werden in der Thompson–Woolley-Formel (Gl. 3.2) in zweiter Ordnung der Taylorentwicklung über den Biegekoeffizienten $b(x)$, auch Bowing-Koeffizient genannt, beschrieben. Seine Abhängigkeit von x deckt hierbei implizit auch Terme höherer Ordnung ab. Die Bandlücke eines ternären Halbleiters bestehend aus den Komponenten A und B ergibt sich dermaßen zu

$$E_G(x) = x \cdot E_{G,A} + (1 - x) \cdot E_{G,B} + \Delta E_G(x) , \quad (3.2)$$

$$\Delta E_G(x) = b(x) \cdot x(x - 1) . \quad (3.3)$$

Bei der Mehrzahl der direkten ternären III-V-Halbleiter ist $\Delta E_G(x)$ klein und bewirkt nur eine geringfügige Abweichung von der linearen Interpolation. Exemplarisch sind einige Biegekoeffizienten in Tabelle 3.1 angegeben.

(AlGa)As	(GaIn)As	Ga(PAs)	Al(PAs)	(GaIn)P	(AlIn)P	In(PAs)	In(AsSb)
0,127 eV	-0,477 eV	-0,19 eV	-0,22 eV	-0,65 eV	0,48 eV	-0,1 eV	-0,67 eV

Tabelle 3.1: *Biegekoeffizienten von verschiedenen ternären III-V-Halbleitern. Aus [Don03]*

Bei quaternären Verbindungen sind die Verhältnisse in der Regel komplizierter. Allerdings ist es auch hier bei vielen Materialien möglich, die Eigenschaften des

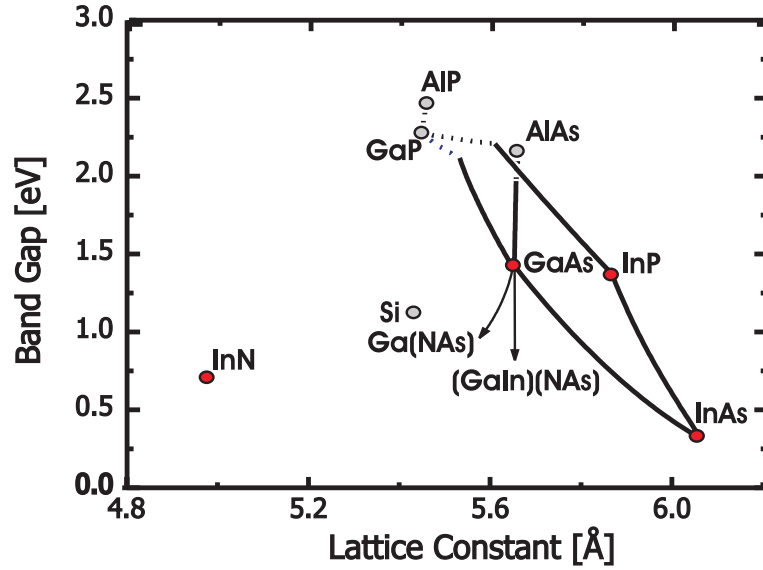


Abbildung 3.1: *Bandlückenenergie und Gitterkonstante einiger III-V-Halbleiter. Durchgezogene Linien bezeichnen direkte Halbleiter, punktierte indirekte Halbleiter.*

Mischkristalls aus denen der einzelnen Komponenten zu bestimmen [Don03]. Von Vorteil bei quaternären Systemen ist es häufig, dass in gewissen Grenzen Bandlücke und Gitterkonstante unabhängig voneinander eingestellt werden können. Dies wird in der Heteroepitaxie ausgenutzt, um auf vorgegebenen Substraten Volumenschichten oder Quantenfilme wachsen zu können, deren Eigenschaften an bestimmte Applikationen angepasst sind.

3.2 Bandstruktur von Ga(NAs)

Bei einer Betrachtung der Bandlückenenergien von GaAs von 1,42 eV und GaN von etwa 3,4 eV bei Raumtemperatur ist gemäß der Vegard'schen Regel zu erwarten, dass eine Mischung dieser beiden Materialien zum ternären System Ga(NAs) eine Bandlücke zwischen diesen Werten ergeben müßte. Ausgehend von GaAs ist entgegen dieser Erwartung jedoch zu beobachten, dass es ab einer Stickstoffkonzentration von ca. 0,2% zu einer deutlichen Verschiebung der Bandlücke zu geringeren Energien kommt. Der Bowingkoeffizient für $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ beträgt bis zu -22 eV und nimmt mit der Konzentration ab [Kla03]. Bei gewöhnlichen Legierungshalbleitern wie beispielsweise (AlGa)As und (InGa)As ist er dagegen wie aus Tabelle 3.1 er-

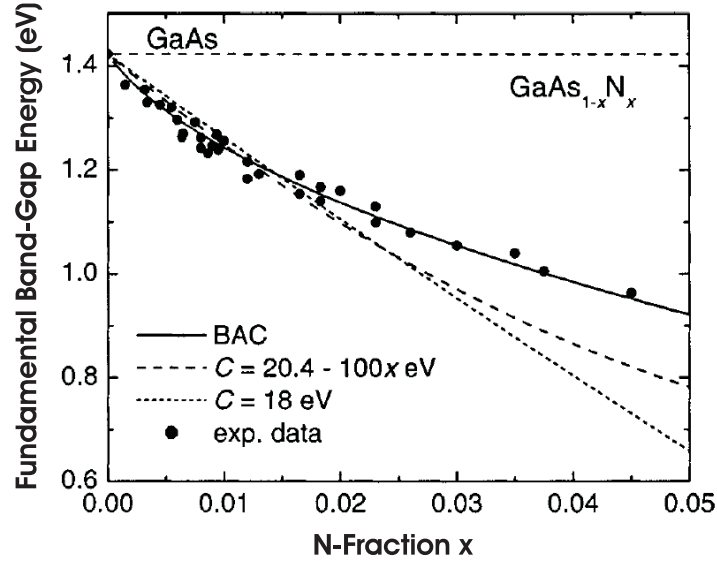


Abbildung 3.2: Bandlücke von $\text{Ga}(\text{NAs})$ als Funktion der Stickstoffkonzentration nach [Vur03a]. Punkte geben experimentelle Werte an, während Linien theoretische Werte mit konstantem (punktirt) und konzentrationsabhängigem (gestrichelt) Bowing-Parameter bzw. entsprechend des BAC-Modells (durchgezogen) angeben.

sichtlich um etwa zwei Größenordnungen kleiner und zudem weitestgehend unabhängig von der Konzentration des Liganden. Diese Rotverschiebung wird begleitet von einer deutlichen inhomogenen Verbreiterung der Photolumineszenz.

Die Ursachen für diese außergewöhnlichen Eigenschaften sind darin zu suchen, dass Stickstoff im Vergleich zu Arsen trotz einer ähnlichen Konfiguration der äußeren Elektronenschale einen wesentlich kleineren Atomradius und eine deutlich größere Elektronegativität aufweist (s. Tabelle 3.2). Der Stickstoffeinbau auf Arsengitterplätzen bewirkt eine lokale Deformation des Kristallgitters durch die geringere Bindungslänge der Ga-N-Bindung. Zusammen mit der größeren Elektronegativität ergibt sich eine Störung des Coulombpotenzials und es bildet sich eine isovalente Störstelle aus.

Druckabhängige PL-Experimente zeigen, dass in GaAs:N bei geringen N-Konzentrationen in der Größenordnung von 10^{16} cm^{-3} die Stickstoffzustände 180 meV oberhalb des Leitungsbands liegen. Der Stickstoffeinbau wirkt sich offenbar nur lokal in Form einer tiefen Störstelle aus, ohne das Leitungsband weiter zu modifizieren, da diese Zustände nur eine geringe Druckabhängigkeit zeigen [Kla03].

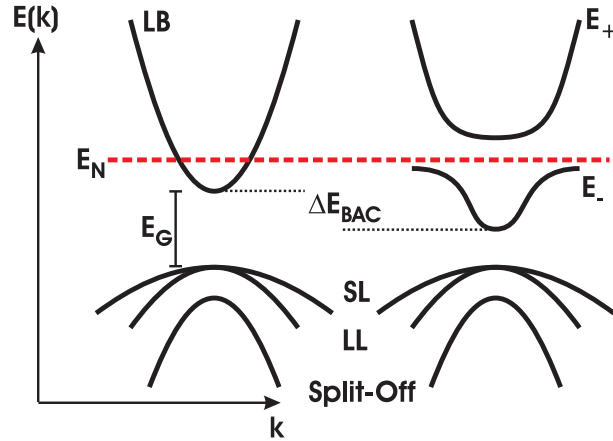


Abbildung 3.3: Schema des BAC-Modell in Ga(NAs). Das Stickstoffband bei E_N liegt resonant im Leitungsband (LB). Ab einer Stickstoffkonzentration von ca. 0,2% spaltet das Leitungsband in das E_+ - und E_- -Band auf und die Bandlücke verringert sich um den Betrag ΔE_{BAC} . Die Leichtloch- (LL), Schwerloch- (SL) und Split-Off-Bänder bleiben unaffektiert.

Bei einer Erhöhung der Konzentrationen kommt es zunächst zu einer Ausbildung von zusätzlichen Stickstoffkomplexen wie N-N-Paarzuständen und Stickstoffclustern, die eine Vielzahl zusätzlicher elektronischer Zustände an und unterhalb der Bandkante erzeugen. Ab einer Stickstoffkonzentration von ca. 0,2% kommt es dann zu einer Rotverschiebung der Bandkante. Gleichzeitig kann in photomodulierten Reflexionsmessungen (PR) die Entstehung eines zusätzlichen Energieniveaus oberhalb des ursprünglichen isolierten Stickstoffniveaus beobachtet werden, das mit zunehmender Stickstoffkonzentration zu höheren Energien schiebt [Kla03].

Im so genannten Band-Anti-Crossing-Modell (BAC-Modell) wird diese Verschiebung darauf zurückgeführt, dass ab dieser Konzentration die lokalisierten Stickstoffzustände zu überlappen beginnen und sich ein dispersionsloses Störstellenband

Atom	r [Å]	EN [eV]
Ga	1,22	1,81
As	1,25	2,18
N	0,71	3,04

Tabelle 3.2: Atomradius r und Elektronegativität EN von Gallium, Arsen und Stickstoff (aus [Han05b])

ausbildet. Dieses liegt energetisch innerhalb des Leitungsbandes wie in Abb. 3.3 skizziert. Es kommt zu einer Aufspaltung der Energieniveaus in ein E_- - und ein E_+ -Band, die mit zunehmendem Stickstoffgehalt zu niedrigeren (E_-) bzw. höheren (E_+) Energien schieben. Ursache ist der quantenmechanische Effekt der Niveauabstoßung. Dieser tritt auf, wenn energetisch resonante Zustände miteinander koppeln, und verhindert, dass verschiedene Zustände einander schneiden. Dies ist modellhaft in Abb. 3.3 dargestellt.

Mathematisch basiert das BAC-Modell auf einer Erweiterung der bekannten 8-Band- $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Theorie [Sch05a]. Hierbei wird den bereits beinhalteten jeweils spin-entarteten Leitungs-, Leichtloch-, Schwerloch- und Split-Off-Bändern noch ein N-induziertes Störstellenband zugefügt. Dieses koppelt über einen Störoperator mit den übrigen Bändern. In der einfachsten Form geht man davon aus, dass diese Wechselwirkung sich auf das Leitungsband beschränkt. Diese Annahme stützt sich auf die Beobachtung, dass in Photoreflexionsmessungen keine wesentlichen Auswirkungen auf die Lage des Split-Off-Bands in Ga(NAs) beobachtet werden [Kla01]. Der Störoperator im Hamiltonian nimmt damit folgende einfache Form an:

$$H(x) = \begin{pmatrix} E_N + ak^2 & \beta\sqrt{(x)} \\ \beta\sqrt{(x)} & E_{LB} + \hbar^2 k^2 / 2m_{LB}^* \end{pmatrix}. \quad (3.4)$$

Die Diagonalelemente geben hierbei die energetische Lage der lokalisierten Stickstoffniveaus (E_N) bzw. des Leitungsbandes am Γ -Punktes im stickstofffreien Ausgangsmaterial mit den jeweils zugehörigen Dispersionen an. Die Nicht-Diagonalelemente beschreiben die Kopplung dieser beiden Niveaus. Das Stickstoffband selbst zeigt auf Grund des lokalisierten Charakters der Stickstoffniveaus eine verschwindende Dispersion, so dass der Parameter a zu null angenommen wird. Die Lage des Γ -Punktes im E_- - und E_+ -Band ergibt sich hieraus zu:

$$E_{\pm} = \frac{E_N + E_{LB}}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{(E_N - E_{LB})^2 + 4(\beta\sqrt{(x)})^2}. \quad (3.5)$$

Die Dispersion $E_-(k) = E_- + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_-^*}$ des E_- -Bandes um den Γ -Punkte kann bestimmt werden, indem man die volle Schrödinger-Gleichung $H\psi = E(k)\psi$ für dieses System löst. Man erhält dann neben der fundamentalen Bandlücke auch die Energieniveaus angeregter Zustände und über die Dispersion auch die effektiven Ladungsträgermassen m^* der verschiedenen Energiebänder von Ga(NAs) über die Relation

$$m_{ij}^* = \hbar^2 \cdot \left(\frac{d^2 E(k)}{dk_i dk_j} \right)^{-1}. \quad (3.6)$$

Bei Ga(NAs) führt der Einbau des Stickstoffs allgemein zu einer Erhöhung der effektiven Masse m_-^* am Γ -Punkt und zu einer ausgeprägten Nichtparabolizität des E_- -Leitungsbands bei höheren Wellenzahlen.

Das BAC-Modell zeichnet sich besonders durch seine breite Anwendbarkeit aus. Es erklärt eine Vielzahl von beobachteten Effekten, insbesondere der Rotverschiebung der Bandlücke und des Anstiegs der effektiven Masse mit ansteigendem Stickstoffgehalt. Zudem ist es nicht nur für das Materialsystem Ga(NAs) anwendbar, sondern beschreibt auch andere verdünnte Nitride wie z.B. (AlGa)(NAs), In(NAs) und (GaIn)(NAs) [Tu01, Vur03a]. Dennoch kann das BAC-Modell nicht als abschließende Theorie angesehen werden. Es ist im Wesentlichen ein empirisches Modell, bei dem die Variablen aus Gleichung 3.5 als Anpassungsparameter an experimentelle Daten genutzt werden. Die so erhaltenen Parameter sind zudem nicht eindeutig und die Auswirkungen von Clusterzuständen werden vollkommen ignoriert.

Ein alternativer Ansatz zur Erklärung der Eigenschaften von $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ sind daher sogenannte *Super-Cell*-Pseudopotenzialberechnungen [Ken03]. Bei diesen wird versucht, die Eigenschaften des Volumenmaterials aus einer Zelle von einigen hundert Atomen zu gewinnen. Dazu verwendet man spezialisierte Näherungsverfahren wie z.B. die Lokale-Dichte-Approximation (LDA). Diese erklären die Entstehung des E_+ -Bandes durch die Mischung von Stickstoffzuständen mit Zuständen des Wirtskristalls, die den Γ -, L - und X -Punkten der Brillouinzone zugeordnet werden, während das E_- -Band seinen Ursprung in den Clusterzuständen unterhalb der Bandkante hat. Dieser Ansatz wird auch durch Experimente unterstützt, die derartige Zustände nachweisen [Wei03, Pat05]. Eine vollständige (und bislang ausstehende) Theorie der Bandformation in verdünnten Nitriden wird letzten Endes eine Verbindung dieser beiden Ansätze schaffen müssen.

3.3 Metastabilität und thermodynamische Eigenschaften

Der Mischbarkeit von GaAs und GaN zu einem Ga(NAs)-Mischkristall sind auf Grund der sehr unterschiedlichen Gitterkonstanten von 5,653 Å für GaAs und 3,19 Å bzw. 5,19 Å für die a - und c -Achsen des GaN sowie der beträchtlichen Differenzen in den atomaren Bindungsenergien Grenzen gesetzt. Hinzu kommen die un-

terschiedlichen Kristallstrukturen dieser beiden Materialien. Der GaAs-Einkristall liegt in Zink-Blende-Struktur vor, während GaN vorzugsweise ein wurtzitartiges Raumgitter ausbildet. Inwieweit überhaupt eine Mischbarkeit der beiden Materialien vorliegt oder ob das System spontan in eine GaAs- und eine GaN-Phase segregiert, richtet sich nach den Regeln der Thermodynamik. Unter isothermen und isochoren Bedingungen befindet sich ein Mischsystem genau dann im thermodynamischen Gleichgewicht, wenn die Freie Enthalpie

$$G = H - T \cdot S = U + p \cdot V - T \cdot S \quad (3.7)$$

minimal wird [Koc02]. Hierbei ist H die Enthalpie des Systems, S die Entropie und T die Temperatur. Erstere wiederum ist gegeben durch die Innere Energie U , den Druck p und das Volumen V , welches als konstant angenommen wird. Bei einem ternären Mischkristall wie Ga(NAs), der effektiv aus den beiden Mischungskomponenten GaAs und GaN besteht, ist die Entropie S gegeben durch $S = k_B \cdot (x \cdot \ln(x) + (1-x) \ln(1-x))$. Bei gegebener Temperatur befindet sich das System nur dann im thermodynamischen Gleichgewicht, wenn es sich in den Minima der freien Enthalpie befindet. Für das Materialsystem Ga(NAs) auf GaAs zeigt sich, dass dieses System nur bei einer Temperatur oberhalb von 7000 K thermodynamisch stabil wäre, wobei hier allerdings anzumerken ist, dass der Schmelzpunkt von GaAs bereits bei 1513 K liegt [Mad, Koc02].

Dies heißt aber nicht, dass das System instabil ist und somit automatisch in seine getrennten Phasen segregiert. Berechnungen zeigen, dass es stattdessen in einem gewissen Kompositionsbereich in einer sogenannten metastabilen Phase vorliegt. In dieser ist das Material zwar thermodynamisch nicht stabil, aber es kann auch nicht ins Gleichgewicht übergehen, da dazu eine hohe Aktivierungsenergie notwendig ist. Das Wachstum einer Ga(NAs)-Schicht ist also möglich, wenn es bei außerordentlichen Nichtgleichgewichtsbedingungen erfolgt. Dazu wird der Stickstoff in die GaAs-Matrix eingebaut, ohne aber die notwendige Aktivierungsenergie für eine Phasenseparation zu erhalten. Das Material bleibt dann in seinem Nichtgleichgewichtszustand eingefroren. Für das Wachstum mittels der metallorganischen Gasphasenepitaxie (MOVPE¹) sind hier Temperaturen im Bereich von 525°C üblich, in der Molekularstrahlepitaxie (MBE²) um 420°C [Yan05a, Dam05]. Diese Temperaturen sind etwa 200°C niedriger als die üblicherweise für das Wachstum von z.B. GaAs verwendeten. Sie sind notwendig, da sonst der Stickstoff von der GaAs-Oberfläche desorbieren würde bevor er in die GaAs-Matrix eingebaut wird. Niedrige Wachstumstemperaturen wirken sich allgemein jedoch negativ auf

¹engl. für *Metal-Organic Vapour-Phase Epitaxy*

²engl. für *Molecular-Beam Epitaxy*

die Schichtqualität aus. Die Beweglichkeit der Atome auf der Oberfläche ist vermindert und die Defektdichte im Kristall wird größer. Besonders N-Atome auf Zwischengitterplätzen und Arsenfehlstellen sind hier zu nennen. Das Wachstum hochqualitativer Ga(NAs)-Schichten ist somit nur in einem eng begrenzten Wachstumsfenster möglich und beschränkt je nach Substrat den maximal erreichbaren Stickstoffgehalt. Bei Ga(NAs) liegt die kritische Stickstoffgrenze bei etwa 9%.

3.4 (GaIn)(NAs)

Ein unter Anwendungsaspekten besonders interessantes verdünntes Nitrid ist das System (GaIn)(NAs). Ähnlich wie Ga(NAs) zeigt auch dieses Material eine starke Rotverschiebung der Bandlücke mit zunehmendem Einbau von Stickstoff im Vergleich zu seinem stickstofffreien Basissystem. Auch hier liefern Erklärungsansätze wie das BAC-Modell oder Pseudopotenzialrechnungen gute Übereinstimmungen zwischen Theorie und Experiment [Kla03, Grü04, Qiu05, Vur03a]. Da es sich aber um ein quaternäres und kein ternäres System handelt, ist die Physik dieses Systems jedoch trotz vieler Ähnlichkeiten zu Ga(NAs) deutlich komplexer. Einer Vielzahl neuer Effekte wird beobachtet, die häufig im Detail noch unverstanden sind. Im Folgenden sollen die Möglichkeiten aber auch die Herausforderungen dieses Materialsystems erörtert werden.

3.4.1 Anwendung

Das besondere Interesse am Materialsystem (GaIn)(NAs) liegt neben dem Interesse an den fundamentalen Eigenschaften der quaternären verdünnten Nitride insbesondere in den Anwendungsmöglichkeiten im Telekommunikationsbereich. Durch den Einbau von Indium und Stickstoff in die GaAs-Matrix kann die Bandlücke soweit verringert werden, dass eine Lichtemission im Bereich von für Datenübertragungsanwendungen geeigneten Wellenlängen möglich ist. Diese sind heutzutage vor allem durch die Charakteristika bestehender Glasfasernetze vorgegeben, welche ein Dispersionsminimum bei $1,31\,\mu\text{m}$ und ein Absorptionsminimum bei $1,55\,\mu\text{m}$ aufweisen. Zur Erreichung hoher Datenübertragungsraten und großer Übertragungsdistanzen werden daher effiziente Lichtemitter bei diesen Wellenlängen benötigt. Standard sind derzeit kantenemittierende Laserdioden auf Basis von InP, welche (GaIn)(PAs)-Quantenfilme als aktives Lasermaterial nutzen. Dieses Materialsystem wird seit den späten Siebzigerjahren kommerziell genutzt und kann in hoher Qualität hergestellt werden. Limitierend wirkt sich jedoch aus, dass auf Grund relativ kleiner Bandkanten-Offsets die Ladungsträger im Leitungsband bei hohen

Temperaturen durch thermische Anregung aus den Quantenfilmen in die Barrieren entweichen können [Kim01]. Die Effizienz solcher Laserdioden ist ohne aufwendige Kühlung deutlich eingeschränkt. Ebenfalls nachteilig wirkt sich aus, dass auf InP die sogenannte VCSEL³-Bauform für Laserdioden nur schwer realisierbar ist, da für InP keine gitterangepassten wachsbaren Materialien mit einem großen Brechungsindexkontrast für die Herstellung von dielektrischen Spiegeln zur Verfügung stehen [Har00].

Das (GaIn)(NAs)-Materialsystem eröffnet die alternative Möglichkeit, geeignete Laserdioden auch auf Basis von GaAs herstellen zu können. GaAs bietet wie InP eine hochentwickelte Prozesstechnologie. Es wird industriell in vielen Bereichen eingesetzt und ist nach Silizium das kommerziell bedeutendste Halbleitersystem. Anwendungsbeispiele sind HEMTs⁴ für Hochfrequenzanwendungen, Photodetektoren, hocheffiziente Solarzellen und Laserdioden für Endverbraucher-Anwendungen wie CD- und DVD-Laufwerke. Ein besonderer Vorteil von GaAs besteht darin, dass es eine vergleichbare Gitterkonstante wie AlAs aufweist. Dieses hat eine wesentlich größere Bandlücke und Brechungsindex, so dass Bragg-Spiegel für VCSEL auf GaAs-Basis leicht realisiert werden können. GaAs hat bei Raumtemperatur eine fundamentale Bandlücke von 1,42 eV, entsprechend einer Wellenlänge von 870 nm. Daher ist zur Erreichung von Wellenlängen um 1,31 μm oder 1,55 μm eine Legierung mit anderen geeigneten Materialien notwendig, wobei das wichtigste und in seiner Auswirkung am besten verstandene Indium ist.

InAs ist ein wie GaAs ein direkter Halbleiter mit einer Bandlücke von 0,324 eV und als Mischkristall zeigt Volumen-(GaIn)As eine Konzentrationsabhängigkeit der Bandlücke der Form $0,324 \text{ eV} + 0,7 \text{ eV} \cdot x + 0,4 \text{ eV} \cdot x^2$ [Mad]. In einer einfachen Betrachtung eröffnen Quantenfilme mit genügend hohem Indiumanteil die Möglichkeit, in den gewünschten Bereich vorzustoßen. Praktisch ist dies jedoch dadurch limitiert, dass der Indiumeinbau zu einer kompressiven Verspannung führt, da die Gitterkonstanten von GaAs (5,65 Å) und InAs (6,06 Å) unterschiedlich sind. Ist der Indiumanteil für eine gegebene Schichtdicke zu hoch, überschreitet die Verspannung eine kritische Grenze und es kommt zu strukturellen Relaxationsprozessen im Wachstum der Schichten, die optischen Eigenschaften degradieren. Bisher sind (GaIn)As-Laserdioden auf Basis von Quantenfilmen daher auf Wellenlängen bis etwa 1270 nm beschränkt⁵[Cha05, Sun03b].

³engl. für *Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser*, Oberflächenemittierender Halbleiterlaser [Sod79]

⁴engl. für *High Electron-Mobility Transistor*

⁵Es gibt seit einigen Jahren Ansätze, auch (GaIn)As als aktives Medium für Telekommunikationswellenlängen zu nutzen. Diese basieren auf (GaIn)As-Quantenpunkten oder metamorphen (GaIn)As-Schichten. [Ihm04].

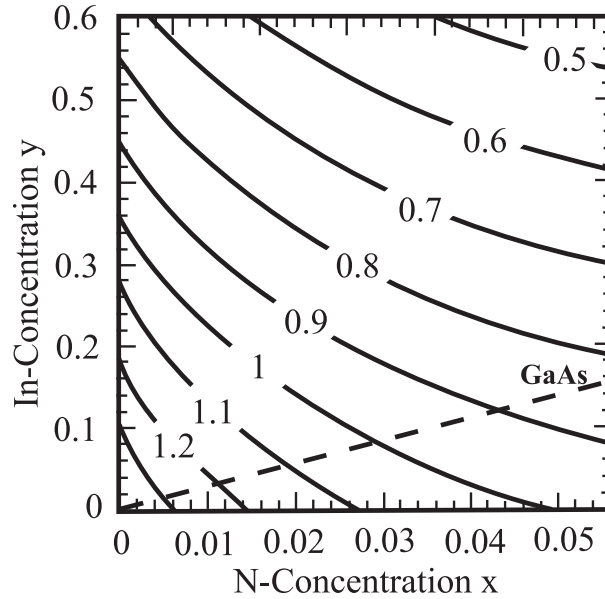


Abbildung 3.4: *Fundamentale Bandlücke von $Ga_{1-y}In_yN_xAs_{1-x}$ als Funktion der Stickstoff- und Indiumgehalte nach [Tix05]. Gestrichelt ist das Mischverhältnis angegeben, bei dem der Kristall zu GaAs gitterangepasst ist.*

Der Einbau von Stickstoff in (GaIn)(NAs) bietet nun nicht nur die Möglichkeit, eine gewünschte Wellenlängenreduktion mit einem geringeren Indiumanteil zu erreichen. Zusätzlich besteht auch der Vorteil, dass Stickstoff in GaAs zu einer tensilen Verspannung führt. Durch geeignete Wahl der Stickstoff- und Indiumkomposition kann in (GaIn)(NAs)-Quantenfilmen daher die Emissionswellenlänge und die Verspannung in einem weiten Bereich unabhängig voneinander gewählt werden, einschließlich der Möglichkeit gitterangepasst, also verspannungsfrei, zum GaAs-Substrat zu wachsen. Daher bietet (GaIn)(NAs) ein großes Potenzial für das so genannte *Band-Gap-Engineering*, d.h. das Wachsen von Halbleiterheterostrukturen mit einer an die jeweiligen Anwendungsbedürfnisse angepassten Bandstruktur. So können für Applikationen als Solarzellen im Infrarotbereich dicke gitterangepasste Volumenschichten gewachsen werden, während Mehrfachquantenfilme für Laserdioden von der Einstellbarkeit der Verspannung profitieren. Für Laseranwendungen wirkt sich weiterhin die im Vergleich zu GaAs vergrößerte effektive Elektronenmasse positiv aus [Gas04, Tom05], da die Differenz zur effektiven Masse der Löcher verringert wird und so die Oszillatorstärke der Band-Band-Übergänge erhöht wird. Das Temperaturverhalten wird ebenfalls verbessert durch das gute Ladungsträger-Confinement auf Grund der großen Bandkanten-

Offsets. So zeichnen sich (GaIn)(NAs)-Laserdioden durch hohe T_0 -Werte⁶ aus, die bis über 150 K betragen können [Liu05, Kit97]. Weitere Verwendungsmöglichkeiten von (GaIn)(NAs)-Schichten liegen in Heterobipolartransistoren (HBT) mit niedrigen Einsatzspannungen [Mon02, Wu04, Su06], als sättigbare Absorber (SESAM⁷) für passiv modengekoppelte Kurzpulslaser im Bereich des nahen Infrarots [Okh03, Jou03, Sun04, Liv04, Sch05c, Spu05, Gra05, Lin05, McW05] und als Resonatorverstärkte Photodetektoren (RCE-PD⁸) [Her99, Pan01, Han05a, Tu01], welchen hohe Quanteneffizienzen mit kurzen Antwortzeiten kombinieren.

3.4.2 Metastabilität und Wachstum

Erschwerend für das Wachstum hochqualitativer (GaIn)(NAs)-Heterostrukturen wirkt sich die Metastabilität des Materialsystems aus. Diese setzt nicht nur den Wachstumsparametern enge Grenzen. Es zeigt sich auch, dass mit steigendem Indiumgehalt der maximal erzielbare Stickstoffprozentatz abnimmt. Oberhalb dieser kritischen Stickstoffkonzentration kommt es zu einem morphologischen Phasenübergang in Form struktureller Verwerfungen, die das schichtweise Wachstum von (GaIn)(NAs)-Schichten verhindern. Allerdings sind offenbar nicht Phasenseparationseffekte in GaN- und GaAs-artige Bereiche hierfür verantwortlich. Stattdessen legen Untersuchungen mittels der Transmissionselektronenmikroskopie nahe, dass die Ursache in stickstoffinduzierten lokalen Verspannungsfeldern zu suchen ist [Vol04]. In [Rub04, Rub05, Vol05] werden diese darauf zurückgeführt, dass der Stickstoff sich nicht einfach stöchiometrisch in die (GaIn)As-Matrix einbaut, sondern Positionen in Ketten entlang der [001]-Richtung des Kristalls einnimmt. Diese sind Ausgangspunkt für eine starke lokale Verzerrung des Kristalls und führen im Wachstumsprozess zu Verwerfungen. Das Wachstum von Schichten für Anwendungen im langwellenlängigen Spektralbereich wird hierdurch erschwert, da effektiv der maximal erreichbare Stickstoffgehalt auf etwa 4 %-5 % beschränkt ist. Dennoch haben (GaIn)(NAs)-Laser für Telekommunikationsanwendungen in den letzten Jahren große Aufmerksamkeit gleichermaßen von Theoretikern und experimentellen Gruppen auf sich gezogen [Car05, Wei05, Sun05, Pal05, Fan03, Tan02, Tan03a, Tan03b, Thr05, Sch05b, Li03]. VCSEL und Kantenemitter mit Emissionswellenlängen um 1,3 μm sowie Kantenemitter bis 1,55 μm konnten bereits realisiert werden [Cal02, Wag00, Dam05, Har01, Fis01, Jas05, Yan05a, Ell99, Vur03b].

⁶Bei Laserdioden hängt nach einer empirischen Formel die Schwellstromdichte j_{th} von der Temperatur grob in der Form $j_{th} \propto e^{-\frac{T}{T_0}}$ ab. Für den stabilen Betrieb in einem weiten Temperaturbereich ist daher natürlich ein möglichst großes T_0 wünschenswert.

⁷engl. für *Semiconductor Saturable-Absorber Mirror*)

⁸*Resonant-Cavity-Enhanced Photo-Detector*)

3.4.3 Blauverschiebung der Bandkante von (GaIn)(NAs) durch Ausheizen

Metastabile Materialien wie (GaIn)(NAs) und Ga(NAs) müssen bei niedrigen Temperaturen gewachsen werden, um eine Stickstoffdesorption von der Oberfläche während der Epitaxie zu verhindern. Damit einher geht eine hohe Defektdichte im Kristall. In der Praxis wird eine einmal gewachsene Heterostruktur daher häufig abschließend einem Temperprozess (engl. *Annealing*) unterworfen. Hierbei wird sie für einige Minuten auf Temperaturen von 650°C bis 850°C erhitzt. Durch thermisch aktivierte Diffusion können so Defekte wie Gitterleerplätze (engl. *Vacancies*), Fehlbesetzungen (engl. *Antisites*) und Atome auf Zwischengitterplätzen (engl. *Interstitials*) entfernt werden, welche als nichtstrahlende Rekombinationszentren fungieren. Bei (GaIn)(NAs) sind so Steigerungen der Photolumineszenzintensität um teilweise bis zum 100fachen nachweisbar. Die Verbesserung der Lumineszenzintensität geht mit einer spektralen Verschiebung der optischen Übergänge zu kürzeren Wellenlängen, also höheren Energien, einher [Sai98, Kla03, MS04]. Diese Verschiebung kann über 70 meV betragen und wird begleitet von einer Verringerung der inhomogenen Linienbreite. Im Gegensatz zu einem konventionellen quaternären Verbindungshalbleiter wie z.B. (GaIn)(PAs) ist die Emissionswellenlänge bei (GaIn)(NAs) also nicht einfach durch die chemische Zusammensetzung des Materials gegeben. Die Ursache und geeignete theoretische Beschreibung dieses ungewöhnlichen Effekts wird noch diskutiert.

Die beiden wichtigsten Ansätze zur Erklärung der Blauverschiebung sind Interdiffusion [Sun03a, Liu03] und eine Änderung der lokalen Nächste-Nachbar-Konfiguration des Stickstoffs [Grü04, Kud03, Cha04b, Lor03, Mus05, Gre02]. Bei Ersterem geht man davon aus, dass Indium und Stickstoff aus der (GaIn)(NAs)-Schicht in angrenzende Bereiche diffundieren und so die Konzentration effektiv verringert wird. Bereits geringe Mengen ausdiffundierten Stickstoffs können zu einer merklichen Blauverschiebung führen, da der Bandverbiegungskoeffizient von (GaIn)(NAs) in Bezug auf Stickstoff bei niedrigen Konzentrationen bis zu -82 eV betragen kann [Sai98]. Bei der Änderung der lokalen Nächste-Nachbar-Konfiguration hingegen wird von einer mikroskopischen Ursache ausgegangen. So ist es während des Wachstums für ein an der Oberfläche adsorbiertes Stickstoffatom energetisch am günstigsten, mit einem Galliumatom eine Bindung einzugehen, da die Stärke der Atombindung, wie aus Tabelle 3.3 ersichtlich, bei GaN wesentlich größer ist als die bei InN. Innerhalb der Schicht sind aber zusätzlich auch Verspannungsenergien zu berücksichtigen. Hier ist es auf Grund der Atomradien und jeweiligen Bindungslängen (s. Tabelle 3.4) energetisch vorteilhaft, wenn das Stickstoffatom möglichst viele Indiumatome als nächste Nachbarn hat. Man hat es also mit dem Effekt zu tun, dass die beim Wachstum bevorzugte chemisch günstigs-

	a [Å]	d [Å]	E_{chem} [eV]
GaAs	5,65325	2,45	-1,63
InAs	6,0583	2,62	-1,55
c-GaN	4,52	1,96	-2,24
c-InN	4,98	2,17	-1,93

Tabelle 3.3: Materialparameter der Ausgangsmaterialien von (GaIn)(NAs). Gitterkonstante a , Bindungslänge d und Bindungsenergie E_{chem} der Ausgangsmaterialien von (GaIn)(NAs). (nach [Mad, Vur03a, Har89]).

te Position des Stickstoffs gerade die im Volumenkristall verspannungsenergetisch ungünstigste ist wie aus Abbildung 3.4.3 und Tabelle 3.4 ersichtlich. Bei der mikroskopischen Deutung der Blauverschiebung beim Ausheizen geht man deshalb davon aus, dass N unter Ausnutzung lokaler und weitreichender Verspannungsfelder über Fehlstellen auf den Arsengitterplätzen in indiumreichere Umgebungen diffundiert. Die Gesamtenergie aus chemischer Bindung und Verspannung wird minimiert. Wie aus Tabelle 3.4 zu entnehmen ist, geschieht dies bei der Konfiguration, bei der der Stickstoff in einer reinen Indiumumgebung angesiedelt ist.

Super-Cell-Pseudopotenzialberechnungen zeigen, dass verschiedene Nächste-Nachbar-Konfigurationen des Stickstoffs jeweils unterschiedliche Lagen des Energieniveaus der Stickstoffstörstelle im Leitungsband zuzuordnen sind. [Kla01, Kla03]. Im BAC-Modell ändert sich damit aber auch die Ankopplung des Stickstoffstörstellenbandes an das ungestörte Leitungsband, was sich auf die Lagen des E_- und E_+ -Bandes auswirkt. Wie aus Abbildung 3.4.3 ersichtlich, kommt es zu einer Blauverschiebung der Bandkante, wenn der Stickstoff anstatt in einer Ga-reichen in einer In-reichen Umgebung eingebaut wird. In der Realität werden diese beiden vorgestellten Effekte nicht vollkommen getrennt voneinander auftreten. Je nach Wachstums- und Ausheizbedingungen kann der eine oder andere stärker aus-

Lokale Konfiguration	E_{strain} [eV]	ΔE_{strain} [eV]	ΔE_{chem} [eV]	ΔE [eV]
N-Ga ₃ In ₁	1,28	-0,55	0,23	-0,32
N-Ga ₂ In ₂	0,92	-1,05	0,46	-0,59
N-Ga ₁ In ₃	0,61	-1,50	0,69	-0,81
N-Ga ₀ In ₄	0,39	-1,86	0,92	-0,94

Tabelle 3.4: Verspannung E_{strain} , Bindungsenergie E_{chem} und Energiebilanz ΔE [eV] für verschiedene Nächste-Nachbar-Konfigurationen in (GaIn)(NAs) bezogen auf eine indiumfreie Umgebung nach [Rub04, Rub05].

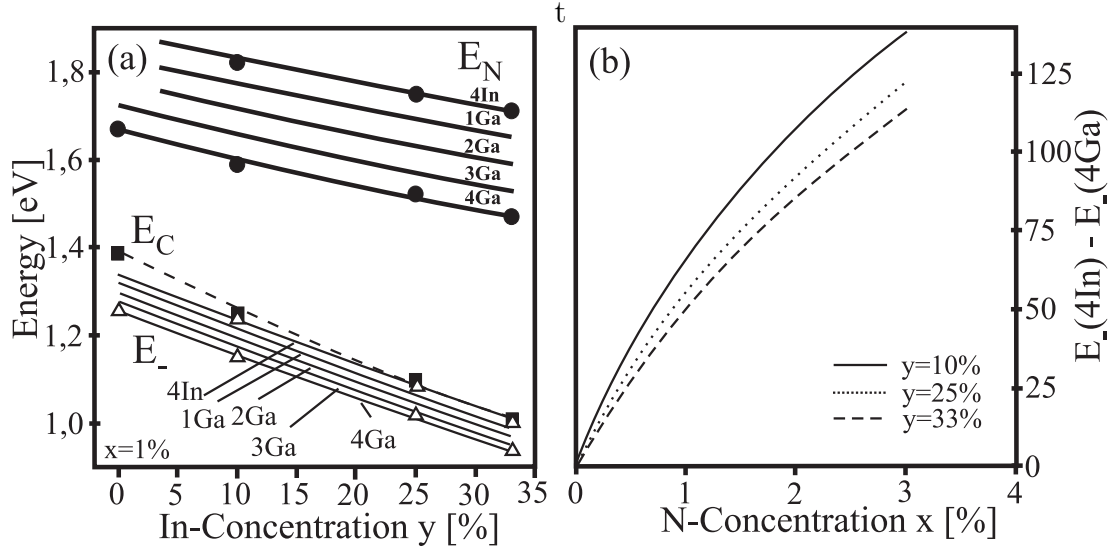


Abbildung 3.5: Ergebnisse aus Superzellrechnungen für die Leitungsbandstruktur von (GaIn)(NAs): (a) Störstellenenergie E_N und neue Leitungsbandkante E_- in Abhängigkeit vom In-Gehalt, (b) Energiedifferenz zwischen den E_- -Bandkanten der Ga_4In_0 - und der Ga_0In_4 -Konfiguration in Abhängigkeit vom N-Gehalt (aus [Kla01]).

geprägt sein [Pen05, Oye05, Kud03].

3.4.4 Lokalisierungseffekte

In einem (GaIn)(NAs)-Kristall liegen die Stickstoffatome, selbst nach dem Tempern, nicht in einer uniformen Nächste-Nachbar-Konfiguration vor, sondern es besteht eine statistische Verteilung möglicher Umgebungen. Da aber jeder dieser Konfigurationen eine andere Lage des E_- -Bands zuzuordnen ist (s. voriger Abschnitt), kommt es zu einer ungeordneten räumlichen Modulation des Leitungsbandes und die Elektronenwellenfunktionen werden in den so erzeugten Potenzialminima lokalisiert. Die Lumineszenz von (GaIn)(NAs) kommt bei nicht zu hohen Ladungsträgerdichten daher vor allem aus diesen lokalisierten Zuständen und nicht aus Band-Band-Übergängen. Man beobachtet bei (GaIn)(NAs) deshalb eine deutliche Stokesverschiebung zwischen Lumineszenz und Absorption und eine starke inhomogene Verbreiterung der optischen Übergänge [Han05b, Zha04, Pla05, Pol00, Vin03].

4 Transiente optische Verstärkung in III-V-Halbleitern

In den vergangenen Jahren waren die Auswirkungen von starken, ultrakurzen Laserimpulsen auf Halbleiter und die transienten Effekte, die sie auslösen, Gegenstand einer Vielzahl von wissenschaftlicher Veröffentlichungen. Diese widmen sich unterschiedlichsten Themen wie spektralem Lochbrennen [Hun93, Bor00, Bor01], dem Ladungsträgereinfang von Barrieren in Quantenfilme [Fan04], Ladungsträgerthermalisieren [Hun93, Kno88, Lin87, Ale95], den Wechselwirkungen zwischen optisch generierten Ladungsträgern und dem Phononensystem des Kristallgitters [Tom95, Lei96] und Effekten auf die Dielektrizitätskonstante [Gle95a, Gle95b, Hua98].

Ein Teilgebiet, zu dem bislang nur sehr wenige Untersuchungen stattgefunden haben, ist die Untersuchung der zeitlichen Entwicklung der optischen Verstärkung in optisch gepumpten Halbleiterquantenfilmen [Cho01, Wan97]. Dieses Gebiet ist jedoch für die weitere Entwicklung von Halbleiterlasern von Interesse, gibt es doch Aufschluss über die intrinsische Dynamik solcher Strukturen. Insbesondere verdünnte Nitride, die in den vergangenen Jahren reges Interesse als aktives Material für Laserdioden auf sich gezogen haben [Pen02], wurden noch nicht auf ihre zeitabhängige Verstärkungsdynamik hin untersucht. Experimente zur Bestimmung optischer Verstärkung beschränken sich auf Gleichgewichtsmessungen [Par05, Wag00, Hof01, Hof02]. In diesem Kapitel soll daher untersucht werden, welche Gemeinsamkeiten und gegebenenfalls Unterschiede zwischen einem konventionellen Halbleitermaterial wie (GaIn)As und einem verdünnten Nitrid wie (GaIn)(NAs) bestehen. Das verwendete experimentelle Verfahren ist die in Kapitel 2.1 beschriebene transiente Absorptionsspektroskopie.

4.1 (GaIn)As

Als Referenzsystem wurde zunächst die transiente Absorption eines konventionellen III-V-Halbleiters, einer (GaIn)As-Probe, untersucht. Dieses Material ist allgemein gut verstanden und weist keine der besonderen Mechanismen der Bandstruk-

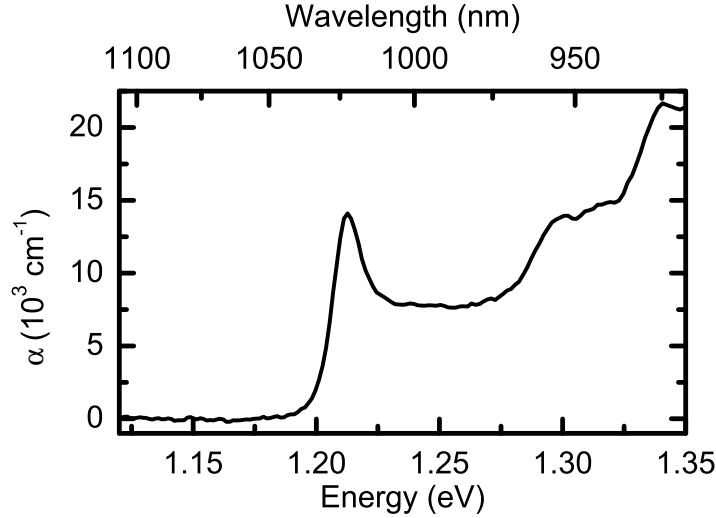


Abbildung 4.1: *Lineares Absorptionsspektrum eines 21fach (GaIn)As-MQW bei Raumtemperatur. Es zeigen sich die Übergänge des LB1-SL1, LB2-SL2 und des LB3-SL3.*

turbildung eines verdünnten Nitridhalbleiters auf. Die an dieser Stelle verwendete Probe mit der Bezeichnung MOD24 wurde von Galina Khitrova und Hyatt M. Gibbs vom College of Optical Sciences der Universität von Arizona in Tuscon, USA, zur Verfügung gestellt. Es handelt sich dabei um eine Heterostruktur auf einem semi-isolierenden GaAs-Substrat mit 21 Indiumgalliumarsenid-Quantenfilmen. Gewachsen wurden sie mittels der Molekularstrahlepitaxie. Die Dicke der (GaIn)As-Schichten beträgt 9,7 nm bei einer Indiumkonzentration von ungefähr 20 %. Die Barrieren zwischen den Quantenfilmen bestehen aus GaAs und sind 32 nm dick.

In Abbildung 4.1 ist das Absorptionsspektrum dieser Probe dargestellt. Es zeigt sich klar die stufenförmige Charakteristik einer Quantenfilmstruktur. Der Absorptionskante bei 1,21 eV bzw. 1025 nm ist hierbei dem Übergang vom ersten Schwerloch- ins erste Leitungsband, dem LB1-SL1¹, zuzuordnen, während die Stufe bei 1,30 eV zum LB2-SL2 gehört, wie Bandstrukturechnungen zeigen. Der Ursprung der weiteren Signatur bei 1,34 eV ist nicht vollkommen geklärt. Entweder handelt es sich hier um den LB3-SL3-Übergang oder aber um einen an sich verbotenen optischen Übergang, dessen Auswahlregeln durch die zweidimensionale elektronische Struktur der Quantenfilme aufgeweicht sind. Der Grundzustand weist bei Raumtemperatur eine starke exzitonische Resonanz durch Coulomb-

¹Im Folgenden wird die Notation verwendet, Leitungsbander mit dem Kürzel LB sowie Leicht- und Schwerlochbander mit LL bzw. SL zu versehen. Eine nachgestellte Zahl gibt an, welches Subband jeweils gemeint ist, wobei 1 den Grundzustand kennzeichnet.

Wechselwirkung, was die exzellente Qualität dieser Probe verdeutlicht. Es ist jedoch darauf hinzuweisen, dass dieses keine Bildung von Exzitonen im eigentlichen Sinn bedeutet. Deren Bindungsenergien liegen im Bereich von etwa 8 meV und sind damit bei Raumtemperatur ($E_{therm}(300\text{ K}) \approx 25\text{ meV}$) durch thermische Aktivierung dissoziiert [Cha04a].

4.1.1 Differenzielle Absorption von (GaIn)As bei niedrigen Anregungsdichten

Zunächst soll die differenzielle Absorption der Probe MOD24 bei geringen Anregungsdichten untersucht werden. Die Probe wurde bei den Experimenten dazu im Brewsterwinkel relativ zum Abfragestrahl montiert, um störende Fabry-Perot-Modulationen durch Reflexionen an der Oberfläche zu unterdrücken. Die Anregung der Probe erfolgte bei einer Wellenlänge von 915 nm und einem Anregefokus von 300 μm Durchmesser, während die Fokusgröße des Abfragestrahls 150 μm betrug. Der Durchmesser wird hier als volle Halbwertsbreite (FWHM²) des Intensitätsprofils auf der Probenoberfläche definiert. Bei einer gaußförmigen Verteilung befinden sich innerhalb dieses Radius 50 % aller Photonen.

Auf Grund der sehr kurzen Impulsdauern der Anregung und der damit verbundenen Spitzenintensitäten kann selbst bei den hier betrachteten „moderaten“ Anregungsleistungen nicht davon ausgegangen werden, dass das Lambert-Beer’sche Gesetz (Gl. 2.1) der Absorption für den Anregestrahls uneingeschränkt gültig ist. Vielmehr kommt es sicherlich zu einem Ausbleichen der Absorption und die Zahl der generierten Ladungsträger wird niedriger sein, als gemäß der linearen Absorption für eine gegebene Anregungsdichte zu erwarten ist. Hinzu kommt, dass die Ladungsträger, die bei hohen Energien in ein anfänglich weitgehend leeres Band injiziert werden, über elastische Streuung untereinander schnell in eine thermische Verteilung übergehen. Auf Grund der Überschussenergie gegenüber dem Grundzustand von 145 meV kann ein Teil der generierten Ladungsträger über diese Streuprozesse genügend Energie erhalten, um aus den Quantenfilmen zu entweichen. Sinnvoller ist es daher, die Anregungsdichte in Form der Zahl der eingestrahnten Photonen pro Fläche zu betrachten. Diese errechnet sich aus der Anzahl der Photonen N_{photon} in einem einzelnen Impuls des Anregestrahls und dem Durchmesser des Anregungsfokus auf der Probe

²engl. für *Full-Width at Half-Maximum*

$$\begin{aligned}
N_{\text{photon}} &= \frac{P_{\text{mittel}}}{\nu_{\text{rep}} E_{\text{photon}}}, \\
n_{\text{photon}} &= \frac{2 N_{\text{photon}}}{\pi d_{\text{FWHM}}^2}.
\end{aligned} \tag{4.1}$$

Hierbei sind P_{mittel} und ν_{rep} die mittlere, zeitintegrierte Leistung beziehungsweise die Repetitionsrate des Lasers und d_{FWHM} ist der Halbwertsdurchmesser des Anregungsfokus. Die Energie eines Photons E_{photon} ist durch Vakuumlichtgeschwindigkeit c_0 , Plank'sches Wirkungsquantum $\hbar = h/2\pi$ und Wellenlänge λ gegeben. Die Umrechnung erfolgt mit folgender Zahlenwertgleichung

$$E_{\text{photon}} = \hbar\omega = \frac{hc_0}{\lambda} = \frac{1239,842447 \text{ eV}}{\lambda(\text{nm})} = \frac{1,986446 \cdot 10^{-16} \text{ J}}{\lambda(\text{nm})}. \tag{4.2}$$

Angeregt wurde die Probe bei einer Wellenlänge von 915 nm bzw. einer Photonenenergie von 1,355 eV. Demgemäß beträgt die Überschussenergie der Ladungsträger etwa 150 meV gegenüber der Bandkante. Im Falle der niedrigen Anregungsdichten betrug die mittlere eingestrahlte Leistung 0,09 mW. Dies entspricht gemäß Gleichung 4.1 einer Anregungsdichte von $2 \cdot 10^{14}$ Photonen pro cm^2 und Impuls. Bei diesen Anregungsbedingungen sind starke Signaturen an den spektralen Positionen der drei optischen Übergänge festzustellen. $-\Delta\alpha L$ -Spektren bei verschiedenen Zeitverzögerungen zwischen Anregung und Abfrageimpuls sind in Abbildung 4.2 dargestellt.

Es zeigt sich, dass die Antwort des Systems zunächst in einem sehr schnellen Anstieg auf einer Zeitskala von 1 ps besteht, der sich über das ganze Spektrum erstreckt. Durch die extrem schnelle Streuung der Ladungsträger untereinander können keine Nichtgleichgewichtsverteilungen beobachtet werden, etwa in Form einer Umverteilung von höheren Energiewerten zur Bandkante hin. Danach steigt das Signal langsam weiter an, bis nach etwa 25 ps ein Maximum des Signals beobachtet wird. Dies ist auf ein Abkühlen der anfänglich heißen Ladungsträger durch eine Wechselwirkung mit dem kühleren Kristallgitter über longitudinal-optische Phononen (LO-Phononen) zurückzuführen. Erst nach dieser Zeit wird Rekombination zum dominanten Prozess der zeitlichen Entwicklung der Ladungsträgerverteilung im k -Raum. Auf längeren Zeitskalen (≥ 100 ps) lassen sich die Signaturen aller drei Zustände gut über einfachexponentielle Zerfälle beschreiben. Die zugehörigen Zeitkonstanten sind 870 ns für den LB1-SL1-Übergang, während der Zerfall der Besetzung des mittleren Zustands 600 ps bis 700 ps nur geringfügig langsamer ist. Für den hochenergetischsten Zustand ist die Bestimmung der Zeitkonstanten nur

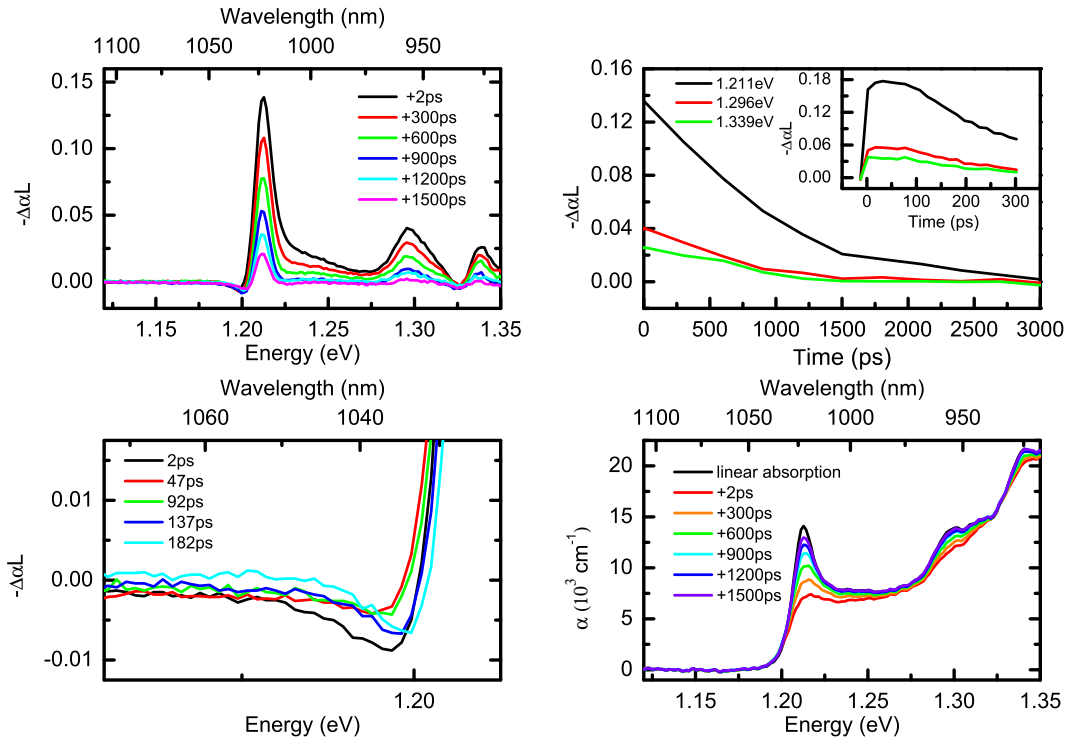


Abbildung 4.2: *Transiente Absorptionsspektren der Probe MOD24 bei einer Anregungsdichte von $2 \cdot 10^{14}$ Photonen pro cm^2 und Impuls. Die verschiedenen Übergänge zeigen klare positive $-\Delta\alpha L$ -Signale durch ein Ausbleichen der Absorption. Kleine negative Werte an den Niederenergieflanken deuten auf Verbreiterungen der exzitonischen Resonanz und Bandkantenrenormalisierungen hin.*

sehr unsicher durchzuführen, da dieser insgesamt nur ein sehr kleines Signal bietet. Sie beträgt $400 \text{ ps} \pm 200 \text{ ps}$.

Betrachtet man dies in Verbindung mit dem linearen Absorptionsspektrum, welches in Abbildung 4.1 dargestellt ist, so erhält man die absolute, zeitabhängige Absorption. Die optische Anregung wirkt sich in erster Linie in einer deutlichen Abschirmung der Coulomb-Wechselwirkung aus, die eine Unterdrückung der exzitonischen Resonanz in der Absorption bedingt, während die stufenförmige Struktur des Absorptionsspektrum für den LB1-SL1-Übergang im Wesentlichen erhalten bleibt. Bei den höheren Zuständen ist eine Verbreiterung festzuhalten, die zu einem Verschwinden der Stufen führt, obwohl im Plateau des LB1-SL1 Ausbleicheffekte eher gering sind.

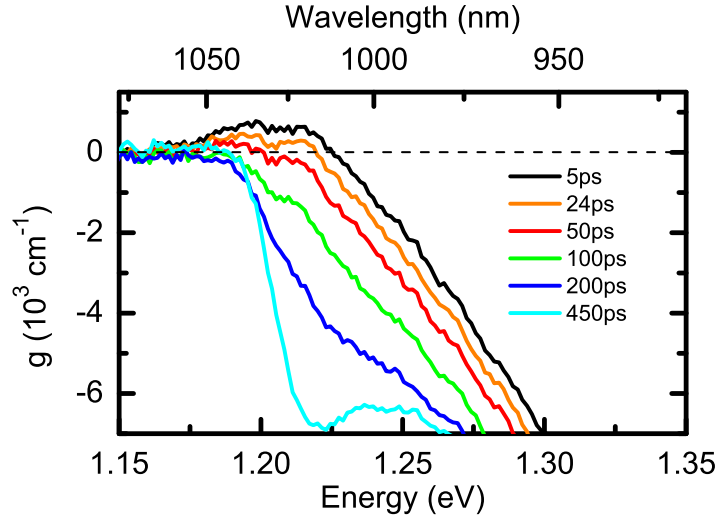
Unterhalb der Bandkante ist in einem spektralen Bereich von bis zu 10 meV Brei-

te eine leicht erhöhte Absorption zu beobachten, entsprechend einem negativen $-\Delta\alpha L$ in einem Bereich von einigen meV. Absolut führt diese Bandkantenrenormalisierung jedoch nicht zu einer signifikanten Rotverschiebung der Absorptionskante, da die Absorptionskante in Gänze verbreitert wird. Hier zeigt sich, dass für die Bandkantenbestimmung aus Absorptionsmessungen die Effekte der Bandkantenrenormalisierung und des Ausbleichens der Absorption einander zuwider laufen und einander kompensieren. So ist dieses negative Signal ca. 2 ps Sekunden nach der Anregung beobachtbar, verschwindet dann aber mit dem langsamen weiteren Ansteigen des Signals. Nach ca. 100 ps kommt es danach wieder zur Zurückbildung des negativen Signals, welches in Folge bis zu einigen Nanosekunden beobachtet werden kann.

4.1.2 Dynamik der optischen Verstärkung in (GaIn)As

Bei einer hinreichend großen Anregungsdichte wird die Absorption nicht nur ausgebleicht, sondern die Probe wird in die Inversion getrieben. In diesem Fall ist am Γ -Punkt der Brillouinzone ein stimulierter Emissionsprozess wahrscheinlicher als ein Absorptionsprozess und es liegt optische Verstärkung vor. Gemäß Gleichung 2.11 ist dies der Fall, wenn $-\Delta\alpha L - \alpha$ einen positiven Wert ergibt, den so genannten optischen Materialgewinn g . Um die Dynamik dieser optischen Verstärkung zu untersuchen, ist eine Erhöhung der Anregungsdichte über die Inversionsschwelle erforderlich. Eine solche Messung bei einer Anregungsdichte von $6,7 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 und Impuls ist in Abbildung 4.3 dargestellt. Die kürzeste Zeit, zu denen hier das Verstärkungsspektrum bestimmt werden kann, ist in etwa 5 ps nach der Anregung. Zu früheren Zeiten ist das Signal durch nichtlineare Effekte und Chirp verfälscht (vergl. dazu die Abschnitte 2.1 und 2.3). Eine Chirpkorrektur der Daten ist hier nicht sinnvoll, da man hier bereits an der Grenze des Auflösungsvermögens arbeitet und somit inakzeptable Verfälschungen der Spektren resultieren würden. Es zeigt sich, dass bereits unmittelbar nach der Anregung eine optische Verstärkung vorliegt. Ein maximaler Wert der optischen Verstärkung von ca. 800 cm^{-1} wird bei 1,199 eV beobachtet. Die Breite des Verstärkungsbereichs beträgt anfänglich rund 50 meV und erstreckt sich von 1,175 eV bis 1,225 eV. In Wellenlängen entspricht dies einem Verstärkungsbereich von 41 nm Breite zwischen 1012 nm und 1053 nm. Die Verstärkung bildet sich im Bereich der exzitonischen Resonanz aus, wobei ein Teil des Spektrums auch zu niedrigeren Energien verschoben ist. Hervorgerufen wird dieses durch eine Bandkantenrenormalisierung, die die effektive Bandlücke vermindert.

Bei der Verfolgung der Dynamik kann ein allmähliches Aufbauen der Inversion nicht beobachtet werden. Während bei geringeren Anregungsdichten von



Abbildungung 4.3: *Transiente Verstärkungsspektren der Probe MOD24 bei einer Anregungsdichte von $6,7 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 und Impuls. Die Transparenz ist zur besseren Übersicht als gestrichelte Linie eingezeichnet.*

$2 \cdot 10^{14}$ Photonen pro cm^2 und Impuls eine Maximum des Signals etwa 25 ps nach der Anregung festzustellen ist, kommt es im Fall der optischen Verstärkung zu einem sofortigen Abbau des Signals über stimulierte Emissionsprozesse. Dementsprechend ist eine Verschmälerung des Verstärkungsspektrums zu beobachten. Diese beschränkt sich nicht allein auf die Hochenergieseite, wo ein Abräumen der Ladungsträgerinversion von den hohen k -Werten bzw. Energien her erfolgt. Auch bei den niedrigeren Energien ist hier eine leichte Verringerung der Verstärkung zu verzeichnen, da zusätzlich noch die Bandkantenrenormalisierung vermindert wird. Die energetische Lage der invertierten Zustände wird damit wieder zurück zur ursprünglichen Bandkante geschoben und die Niederenergiekante der optischen Verstärkung wandert zu höheren Energien. Nach einer Zeit von etwa 75 ps ist die Inversion abgebaut und die Probe weist keine Spektralbereiche optischer Verstärkung mehr auf.

Bei einer Erhöhung der Anregungsdichte auf $6,1 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls kommt es zu einer Erhöhung des maximalen Gewinns auf etwa 2000 cm^{-1} und zu einer deutlichen Verbreiterung des Spektrums. Der spektrale Bereich der Verstärkung wird bis zu 90 meV breit und reicht von etwa 1060 nm auf der langwelligen Seite bis hinunter zu 990 nm im Kurzwelligen. Die Verbreiterung des Spektrums geschieht damit vorwiegend auf der hochenergetischen Seite. Ein zusätzliches Verschieben der Bandkante zu niedrigen Energien und damit eine Rotverschiebung des

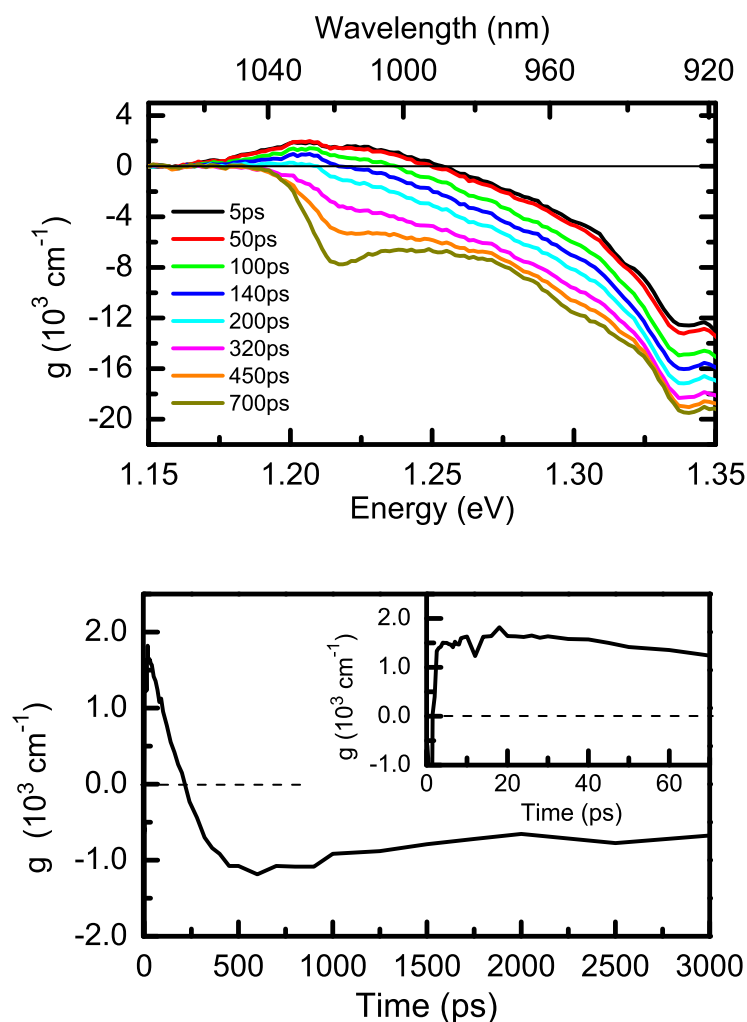
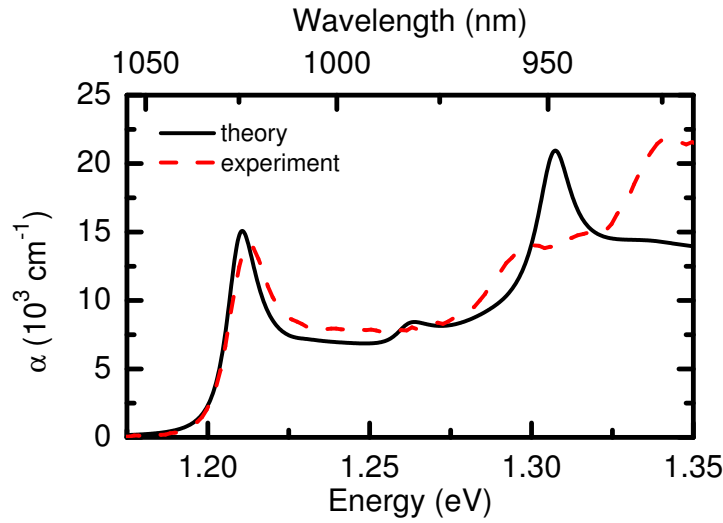


Abbildung 4.4: **Oben:** Transiente Verstärkungsspektren der Probe MOD24 bei einer Anregungsdichte von $6,1 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls. **Unten:** Zeitlicher Verlauf der optischen Verstärkung bei einer Übergangsenergie von 1,197 eV. Die gestrichelt eingezeichnete Transparenz wird nach 210 ps erreicht.

Verstärkungsbereichs findet kaum statt. Bei der zeitlichen Entwicklung der Spektren ist festzustellen, dass die Spektren bis 40 ps kaum Unterschiede zeigen und erst danach ein zunehmender Abbau der Verstärkung stattfindet. Ein Abkühlen der anfänglich heißen Ladungsträger wirkt dem Abbau der Population entgegen, so dass das Verstärkungsspektrum zunächst relativ konstant bleibt. Nach etwa 150 ps ist das Verstärkungsspektrum dann weitestgehend identisch mit demjenigen, das kurz nach der Anregung bei der Anregungsdichte von $6,7 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 und Impuls ermittelt wird.



Abbildungung 4.5: *Theoretisch und experimentell ermittelte lineare Absorptionsspektren der Probe MOD24 bei Raumtemperatur.*

4.1.3 Vergleich mit einer mikroskopischen Theorie

Für ein tieferes Verständnis der gemessenen Verstärkungsspektren ist ein Vergleich mit theoretischen Spektren nötig. Solche Spektren können mit den unter Abschnitt 2.4.2 vorgestellten Halbleiter-Blochgleichungen errechnet werden [Sch05a]. In den hier dargestellten Spektren wurde der optische Gewinn für gegebene konstante Ladungsträgerdichten und Temperaturen ermittelt und diese dann mit den experimentellen Daten verglichen. Bei den Berechnungen wurde ein Indiumgehalt von 19,8 % zu Grunde gelegt und die Ladungsträgertemperatur wurde mit 300 K angenommen. Letzteres ist gerechtfertigt, sofern ein vollständiges Thermalisieren des Ladungsträger- und des Gittersystems miteinander angenommen werden können.

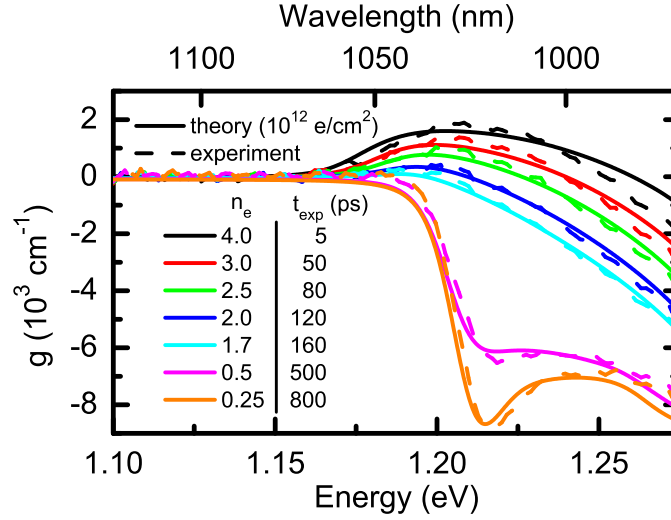
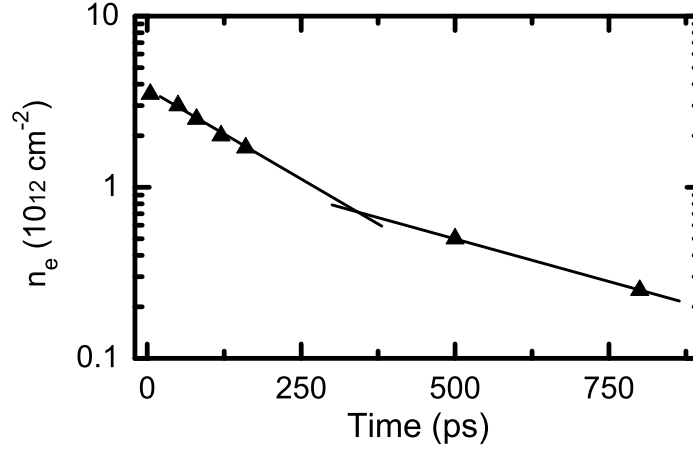


Abbildung 4.6: Theoretisch und experimentell ermittelte Verstärkungsspektren der Probe MOD24 bei Raumtemperatur. Die Zuordnung erfolgt unter Verwendung der Zeit als Anpassungsparameter.

Thermalisierungszeiten in Halbleitern auf Galliumarsenidbasis liegen bei Raumtemperatur typischerweise im Bereich einiger Pikosekunden und sind dementsprechend viel schneller als die beobachteten Abklingzeiten der Population. Insofern kann eine vollständige Thermalisierung in erster Näherung angenommen werden. Zusätzlich wurde in den theoretischen Spektren eine geringfügige inhomogene Verbreiterung von 7 meV angenommen.

Wie sich bereits in einem Vergleich eines experimentell bestimmten und eines theoretisch errechneten linearen Absorptionsspektrums in Abbildung 4.5 zeigt, können gerade nahe der Bandkante gute Übereinstimmungen zwischen Experiment und Theorie erzielt werden, wobei allerdings für höhere Zustände gewisse Diskrepanzen bestehen. Für den Vergleich des Experiments mit der Theorie wird einem gegebenen Verstärkungsspektrum mit konstanter Ladungsträgerdichte dasjenige experimentelle Spektrum zugeordnet wird, zu dem eine möglichst große Übereinstimmung besteht. Dies ist notwendig, da zum Zeitpunkt dieser Arbeit eine vollständige Modellierung zur zeitlichen Dynamik noch ausstand.

Das Ergebnis einer solchen Anpassung ist in Abbildung 4.6 dargestellt. Die Anregungsbedingungen waren hier $2, 4 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls bei einer Photonenenergie von 1,305 eV ($\hat{=}$ 950 nm Wellenlänge). Wie leicht zu erkennen ist, kann eine sehr gute Übereinstimmung gefunden werden für einen großen Bereich von Ladungsträgerdichten bzw. Zeitverzögerungen. Abweichungen zwischen



Abbildungung 4.7: *Transiente Ladungsträgerdichte in der Probe MOD24 nach einer Anregung mit $2,4 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 und Impuls bei 1,305 eV.*

den gemessenen (gestrichelten) und berechneten (durchgezogenen) Spektren liegen weitestgehend im Rahmen der Messgenauigkeit. Erst bei Ladungsträgerdichten von $1 \cdot 10^{11} \text{ e/cm}^2$ und weniger kommt es zu größeren Diskrepanzen im Bereich der exzitonischen Resonanz. Die Abweichungen zwischen Theorie und Experiment bei einer Zeitverzögerung von 5 ps liegen darin begründet, dass die Vergleichsladungsträgerdichte mit $4 \cdot 10^{12} \text{ e/cm}^2$ etwas zu hoch angenommen wurde. Ein etwas geringerer Wert von ca. $3,5 \cdot 10^{12} \text{ e/cm}^2$ dürfte realistischer sein. Es ist anzumerken, dass die hier zum Vergleich herangezogenen Ladungsträgerdichten wesentlich geringer sind, als es nach der Anregungsdichte und der beobachteten linearen Absorption zu erwarten gewesen wäre. So ergibt sich hier ein Unterschied von rund zwei Größenordnungen. Dies verdeutlicht, dass Ausbleicheffekte während der Anregung mit starken 100 fs-Impulsen die Zahl der angeregten Ladungsträger massiv begrenzen.

Die zeitliche Entwicklung der Flächenladungsträgerdichte lässt sich aus der Anpassung der experimentellen Spektren zu unterschiedlichen Verzögerungszeiten an die theoretischen Vorhersagen gewinnen. Abbildung 4.7 zeigt, dass es grob zu einem biexponentiellen Zerfall der Ladungsträgerdichte kommt. Im Bereich schneller Relaxation beträgt die charakteristische Zeitkonstante rund 190 ps und verringert sich auf etwa 450 ps unterhalb der Schwelle zur optischen Vertärkung. Erklären lässt sich dies damit, dass es zu den Zeiten, bei denen eine optische Vertärkung existiert, effektiv zu einer beschleunigten Rekombination über stimulierte Emissionsprozesse kommt. Ein spontan strahlend rekombinierendes Elektron-Loch-Paar

sendet ein Photon aus, das weitere Elektron-Loch-Paare zur stimulierten Emission anregt. Dieser Rekombinationskanal fällt weg, sobald die Probe die Transparenz erreicht hat. Untermauert wird diese Interpretation dadurch, dass der Punkt, an dem sich die Zerfalldynamik ändert, im Bereich um $8 \cdot 10^{11} \text{ e/cm}^2$ liegt (s. Abbildung 4.7). Dies entspricht in etwa denjenigen Ladungsträgerdichten, ab denen optische Verstärkung beobachtet wird.

4.2 MBE-gewachsene 10,4 nm-(GaIn)(NAs)-MQW

Die erste untersuchte (GaIn)(NAs)-Laserstruktur ist eine für Laseranwendungen optimierte Heterostruktur aus drei 10,4 nm breiten Quantenfilmen mit der Bezeichnung 12934. Gewachsen wurde sie in der Arbeitsgruppe von Dr. Henning Riechert von der Infineon Technologies AG in München. Sie enthält nominell je 26 % Indium- und 1,8 % Stickstoff in den Quantenfilmen. Bestimmt wurden diese Gehalte unter anderem mittels der spektralen Position der Übergänge, daher sind die Konzentrationsangaben relativ unsicher und müssen mehr als Richtwerte denn als gesicherte Größen behandelt werden. Getrennt werden die Quantenfilme von GaAs-Barrieren mit einer Dicke von 24,6 nm. Die Probe wurde nach dem Wachstum einem Ausheizschritt unterzogen, bei dem sie im direkten Anschluss an die Epitaxie für 10 Minuten auf 730°C erwärmt wurde. Dies vermindert durch thermische Aktivierung die Störstellenkonzentration und eliminiert so einen Teil der nichtstrahlenden Rekombinationszentren.

4.2.1 Transiente Absorption bei moderaten Anregungsdichten

Eine Messung der linearen Absorption der Probe 12934 gestaltet sich schwierig, da die Gesamtdicke der absorbierenden Schichten auf Grund der geringen Anzahl der Quantenfilme insgesamt nur 31,2 nm beträgt. Die Schwächung des Lichts hängt gemäß $P = P_0 \cdot e^{-\alpha L}$ exponentiell von der absorbierenden Schichtdicke ab, wobei, verglichen mit der zuvor untersuchten (GaIn)As-Probe, die Schichtdicke weniger als ein Sechstel beträgt. Insgesamt ist die Transmissionsänderung auf Grund der Absorption in den Quantenfilmen somit gering. Auf Grund eines störenden Hintergrundbeitrags des Substrats konnte die Messung des linearen Absorptionskoeffizienten im Rahmen dieser Arbeit nicht mit einer befriedigenden Präzision durchgeführt werden. Für die Untersuchung dieser Probe muss daher einzig auf das

differenzielle Absorptionssignal zurückgegriffen werden, da dieses ein wesentlich besseres Signal-zu-Rausch-Verhältnis bei kleinen Signalstärken ermöglicht. Trotz der geringen Gesamtschichtdicke der Heterostruktur kann das differenzielle Absorptionssignal immer noch mit großer Genauigkeit gemessen werden und somit ist eine Untersuchung der Probe 12934 möglich, sofern man sich auf die Größe $-\Delta\alpha L$ beschränkt. Da dieses die gesamte Information der Dynamik beinhaltet, können auch so wichtige Aussagen gewonnen werden. Einzig eine Unterscheidung, ob man sich im Bereich der Verstärkung oder der ausgebleichten Absorption befindet, ist nicht trivial möglich.

Die Anregung dieser Probe fand bei einer Wellenlänge von 915 nm statt, entsprechend einer Photonenenergie von 1,355 eV. Differenzielle Spektren zeigen drei deutliche Signaturen bei 0,969 eV, 1,065 eV und 1,19 eV. Somit beträgt die Überschussenergie der generierten Ladungsträger in etwa 385 meV bezogen auf den Grundzustand. Die zu beobachtenden Signaturen sind den LB1-SL1, LB2-SL2 und LB3-SL3 Schwerloch-Leitungsband-Übergängen zuzuordnen, wie Bandstrukturechnungen zeigen. Leichtlochartige Zustände sind auf Grund der kompressiven Verspannung der Quantenfilme zu niedrigeren Energien verschoben und nicht mehr gebunden. Die große Schärfe und Steilheit des Signals zeigen die hohe Qualität dieser Probe. Dies wird zusätzlich deutlich in der Überhöhung des Signals an der Bandkante bzw. an den spektralen Positionen der höheren Zustände. Hier führen die hohen Ladungsträgerdichten zu einer Abschirmung der Coulombwechselwirkung der Ladungsträger untereinander und somit zu einem starken Ausbleichen einer exzitonischen Resonanz hoher Oszillatorstärke. So sind in einem direkten Vergleich mit der (GaIn)As-Probe MOD24 aus dem vorigen Abschnitt bei vergleichbaren Anregungsbedingungen ähnliche $\Delta\alpha$ -Werte zu beobachten. Die maximalen differenziellen Absorptionswerte, die unter Berücksichtigung der aktiven Schichtdicke erreicht werden, liegen bei bis zu 18000 cm^{-1} beim ersten angeregten Übergang bei 1,06 eV Übergangsenergie bei einer Anregungsdichte von $6 \cdot 10^{15} \text{ Photonen pro cm}^2$ und Impuls.

Das differenzielle Signal bei relativ geringen Anregungsleistungen von $0,21 \mu\text{J}$ pro Impuls ist in Abbildung 4.8 dargestellt. Auf Grund der sehr geringen Anregungsleistung ist unter diesen experimentellen Bedingungen die im Substrat induzierte Zweiphotonenabsorption sehr gering und auch der Aufbau der Besetzung kann untersucht werden. Es zeigt sich, dass sich das differenzielle Signal und damit die Besetzung im Rahmen der Zeitauflösung des Experiments im Wesentlichen instantan aufbaut. Ebenfalls können im Rahmen der Messgenauigkeit auch keine Umverteilungsprozesse innerhalb der Besetzung von anfänglich hohen k -Werten hin zum Grundzustand festgestellt werden. Die Ladungsträgerverteilung ist somit in weniger als einer halben Pikosekunde, der Zeitauflösung in diesem Experiment,

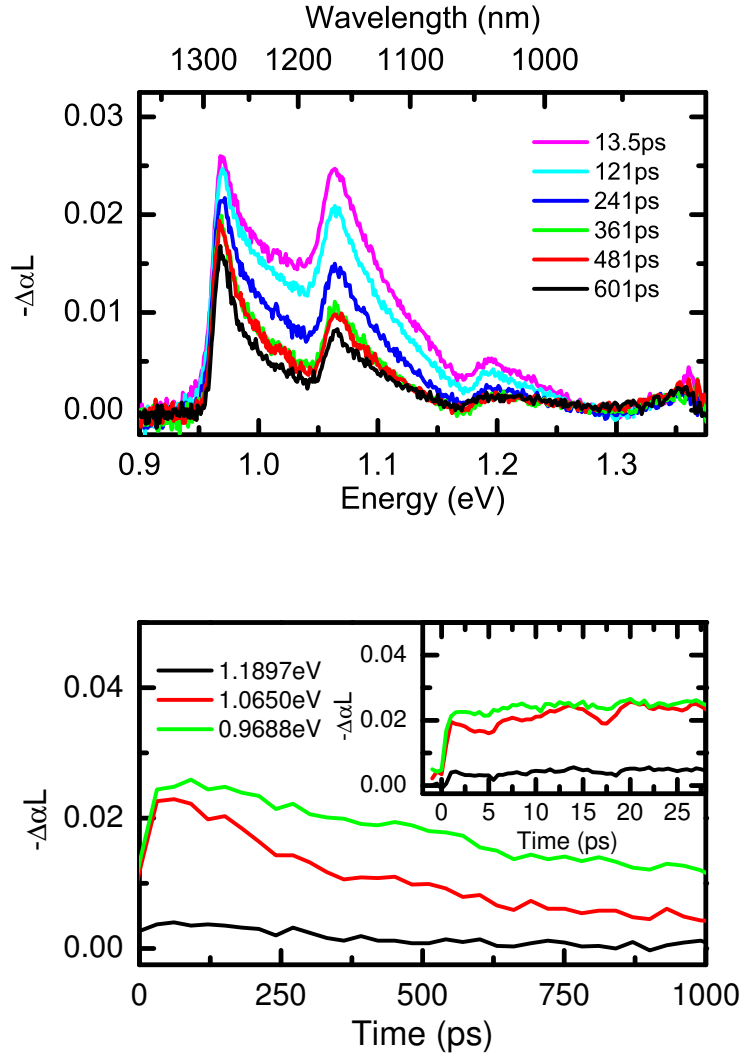


Abbildung 4.8: *Transiente und Spektren der Probe 12934 bei $0,21 \mu\text{J}$ Impulsenergie und 915 nm Anregungswellenlänge. Dies entspricht einer Anregungsdichte von $7 \cdot 10^{14}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.*

vollständig in eine Fermi-Verteilung übergegangen. Ein leichter Anstieg des Signals der angeregten Zustände für einige 10 ps nach der Anregung ist auf eine Abkühlung der Ladungsträgerverteilung durch Wechselwirkung mit longitudinal-optischen Phononen (LO-Phononen) zurückzuführen.

Auf längeren Zeitskalen von einigen hundert Pikosekunden ist eine Relaxation der Zustandsbesetzung zu verzeichnen, die im Falle des $N=1$ -Zustands mit einer Zeitkonstante von $980 \text{ ps} \pm 30 \text{ ps}$ verbunden ist. Der $N=2$ -Zustand zerfällt doppelt so schnell mit $450 \text{ ps} \pm 30 \text{ ps}$ während die Besetzung des nur schwach zu erkennenden $N=3$ -Zustands nochmals schneller in 200 ps abgebaut wird.

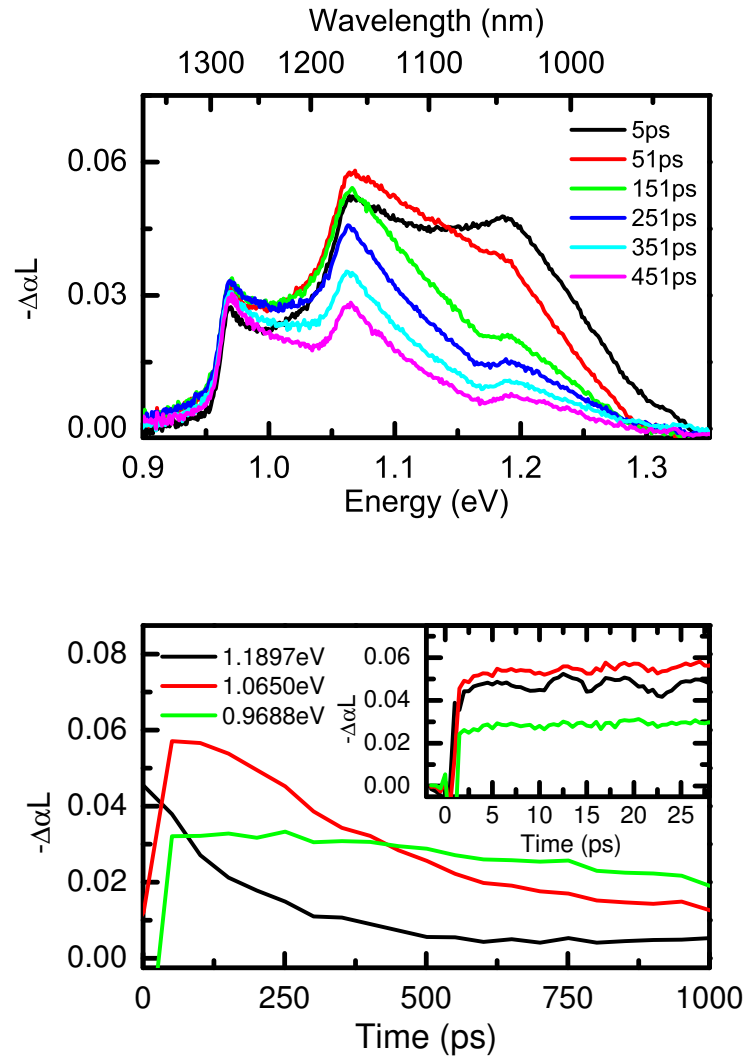


Abbildung 4.9: *Transiente und Spektren der Probe 12934 bei $2,7\mu\text{J}$ Impulsenergie und 915 nm Anregungswellenlänge. Dies entspricht einer Anregungsdichte von $9 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.*

Wird die Anregungsdichte erhöht, so verschwindet das exponentielle Verhalten der Zerfälle bei den niederenergetischen Zuständen. In Abbildung 4.9 ist dies für eine Anregungsimpulsenergie von $2,7\text{ mJ}$ dargestellt. Es kommt zuerst zu einem Abbau der Besetzung des hochenergetischen Zustände, während die Besetzung bei niedrigeren Energien zunächst nur sehr langsam abnimmt oder gar konstant bleibt. Dies ist besonders deutlich in Abbildung 4.9 c) zu erkennen, wo innerhalb der ersten 400 ps nur eine sehr geringe Verminderung der Besetzung des Grundzustands zu beobachten ist. Ursache dafür ist, dass Ladungsträger aus höheren Zuständen durch Streuprozesse in die niederenergetischen Zustände überführt werden. Der

Verlust von Ladungsträgern durch Rekombination wird durch ein schnelles Nachfüllen aus den höheren Zuständen vollständig kompensiert, so dass die Zustände nahe der Bandkante voll besetzt bleiben. Ein Zerfall der Gesamtpopulation erfolgt sukzessive von höheren Zuständen her. Erst wenn die Population der höheren Zustände weitestgehend aufgebaut worden ist, so dass keine Ladungsträger mehr für das Nachfüllen der unteren Zustände zur Verfügung stehen, kommt es auch dort zu einem Abbau der Population. Dies zeigt, dass bei hohen Dichten die Ladungsträgerdynamik in großem Maße von Intrabandprozessen beherrscht wird. Die Besetzung des Übergangs bei 1,065 eV zeigt keine monotone Dynamik. Stattdessen ist auf kürzeren Zeitskalen von einigen 10 ps zunächst ein Ansteigen zu verzeichnen, dass durch ein Abkühlen der anfänglich heißen Ladungsträger durch die Wechselwirkung mit den Phononen des kühleren Kristallgitters bedingt ist. Dies drückt sich auch in der zunehmenden Steilheit der hochenergetischen Signalflanke dieses Übergangs aus, wie in Abb. 4.9 zu erkennen.

4.2.2 Optische Verstärkung

Da, wie bereits ausgeführt, kein lineares Absorptionsspektrum zur Verfügung steht, kann nur schwer festgestellt werden, ob unter den hier betrachteten Anregungsbedingungen optische Verstärkung vorliegt. Allerdings gibt es eine Reihe von spektralen Signaturen, die auf Verstärkung hinweisen. Zunächst ist die Absättigung des differentiellen Signals bei 0,969 eV ein klares Zeichen, dass die Zustände bei niedrigen k -Werten weitestgehend aufgefüllt sind, somit weitere Ladungsträger nur noch höhere Zustände einnehmen können und das Fermi-niveau entsprechend hoch im Leitungsband liegt. Da dieses gleichermaßen für Löcher als auch für Elektronen gelten muss, ist das Vorliegen einer Besetzungsinversion mehr als wahrscheinlich. Für eine quantitative Analyse lässt sich zusätzlich die optische Verstärkung unterhalb der Gleichgewichtsbandkante abschätzen. Unter der Gleichgewichtsbandkante ist hier jene Bandkante zu verstehen, die das Material im thermischen Gleichgewicht ohne optische Anregung zusätzlicher Elektron-Lochpaare aufweist. Bei hohen Ladungsträgerdichten kommt es auf Grund von Vielteilcheneffekten zu einer Rotverschiebung der Bandlücke, auch Bandkantenrenormalisierung genannt. Der spektrale Bereich optischer Verstärkung liegt daher bei einem Halbleiter zu einem gewissen Teil unterhalb der Gleichgewichtsbandkante, da die Inversion natürlich gerade die energetisch tiefstliegenden Zustände betrifft. Positive Signale bei hohen Anregungsdichten unterhalb dieser Energie können direkt als optische Verstärkung gewertet werden, da es dort keine Absorption gibt, die zusätzlich ausgebleicht werden könnte. Bei der hier untersuchten Probe wird dieses durch die sehr scharfe Bandkante erleichtert, die durch Messung der differentiellen Absorption bei mo-

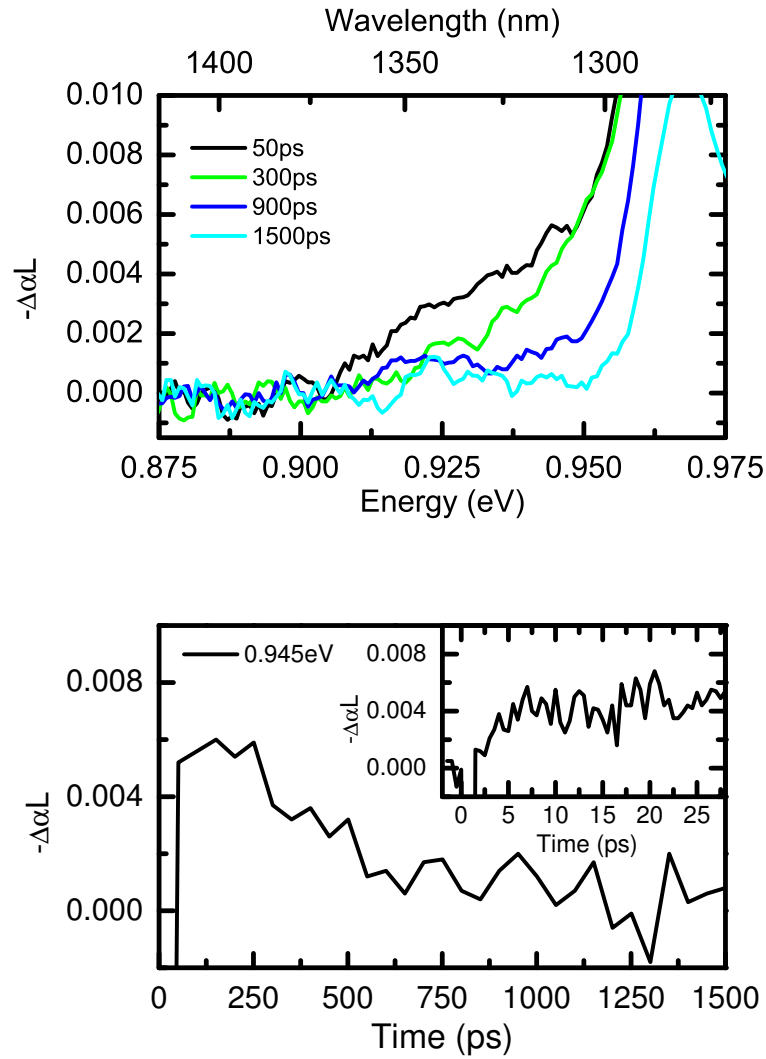


Abbildung 4.10: *Transienten und Spektren der Probe 12934 bei hoher Anregungsdichte unterhalb der Gleichgewichtsbandkante.*

deraten Anregungsdichten sehr genau ermittelt werden kann (s. Abb. 4.8).

In der Tat kann beobachtet werden, dass bei hoher Anregungsdichte das differenzielle Signal zu niedrigen Energien hin einen positiven Ausläufer ausbildet, der bei geringen Anregungsdichten beziehungsweise auf langen Zeitskalen nicht zu beobachten ist, wie in Abbildung 4.10 dargestellt. Eine Untersuchung der zeitlichen Dynamik dieses Ausläufers ist exemplarisch bei einer Energie von 0,945 eV durchgeführt. Es zeigt sich, dass das Signal nach einem schnellen Anstieg auf der 1 ps Zeitskala zunächst weiter leicht ansteigt und nach einigen 10 ps seinen Maximalwert erreicht und dann weitestgehend konstant bleibt. Ursache für den Anstieg dürfte ein Abkühlen der Ladungsträger sein, wie es auch bei höheren Energien zu beobachten

ist. Nach etwa 250 ps erfolgt dann ein exponentieller Zerfall mit einer Zeitkonstante von (250 ± 80) ps. Die große Unsicherheit in der Zeitangabe ist vor allem darauf zurückzuführen, dass das maximale Signal $-\Delta\alpha L$ nur in etwa 0,006 beträgt und damit im Grenzbereich der Auflösung des Experiments liegt. Der maximale optische Gewinn wird mit diesen Werten zu etwa $2000 \text{ cm}^{-1} \pm 1000 \text{ cm}^{-1}$ abgeschätzt. Sowohl die absolute Größe als auch die Zerfallszeit sind damit sehr ähnlich denjenigen Werten, die für (GaIn)As gewonnen werden. Die Verzögerung der Reduktion ist weniger einer intrinsischen Eigenschaft des Materialsystems (GaIn)(NAs) zuzuordnen als vielmehr dem Umstand, dass mit sehr hoher Überschussenergie in einen energetisch sehr tiefen Quantenfilm angeregt wurde und sogar in den zweiten angeregten Zustand. Die ursprüngliche Ladungsträgerdichte dürfte deutlich höher sein, als bei den Messungen an der Probe MOD24 bei ähnlichen Photonendichten. Damit stehen mehr Ladungsträger zur Verfügung, die Rekombination aus niedrigen Zuständen kompensieren können und es kommt zu der beobachteten Verzögerung der Verstärkungsreduktion.

4.2.3 Vergleich zur Theorie

Auf Grund der Tatsache, dass bei dieser Probe keine zufriedenstellende Absorptionsmessung vorgenommen werden konnte, ist ein Vergleich mit einer mikroskopischen Theorie besonders wichtig. Hierzu werden aus theoretischen Absorptionsmessungen $-\Delta\alpha L$ -Spektren für verschiedene Ladungsträgerdichten ermittelt und diese dann mit den experimentell ermittelten Spektren verglichen.

In Abbildung 4.11 ist ein solcher Vergleich für eine Ladungsträgerdichte von $5 \cdot 10^{12}$ Elektronen pro cm^2 durchgeführt. Bei dieser Berechnung wurde eine Komposition mit 23,3% Indium und 1,61% Stickstoff angenommen. Diese Abweichung von den nominellen Werten ist notwendig für eine möglichst genaue Anpassung der spektralen Lagen der beobachteten Übergänge. Weiterhin wurde eine inhomogene Verbreiterung von 25 meV zu Grunde gelegt. Als experimentelles Vergleichsspektrum dient dasjenige aus Abbildung 4.9 bei einer Zeitverzögerung von 150 ps.

Zu einer Verzögerungszeit von 450 ps wird eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment für eine Ladungsträgerdichte von $5 \cdot 10^{12}$ Elektronen pro cm^2 gefunden. Analog zum Experiment wird auch hier beobachtet, dass sich der Verstärkungsbereich durch Bandkantenrenormalisierungseffekte in den Bereich der niedrigeren Energien ausbreitet. Der starke Anstieg des LB2-SL2-Übergangs in den experimentellen differentiellen Spektren ist auch in der Theorie nachzuvollziehen. Eine Betrachtung des differentiellen Absorptionsspektrums zugehörigen Verstärkungsspektrum zeigt die Einflüsse höherer Zustände auf die optische Verstär-

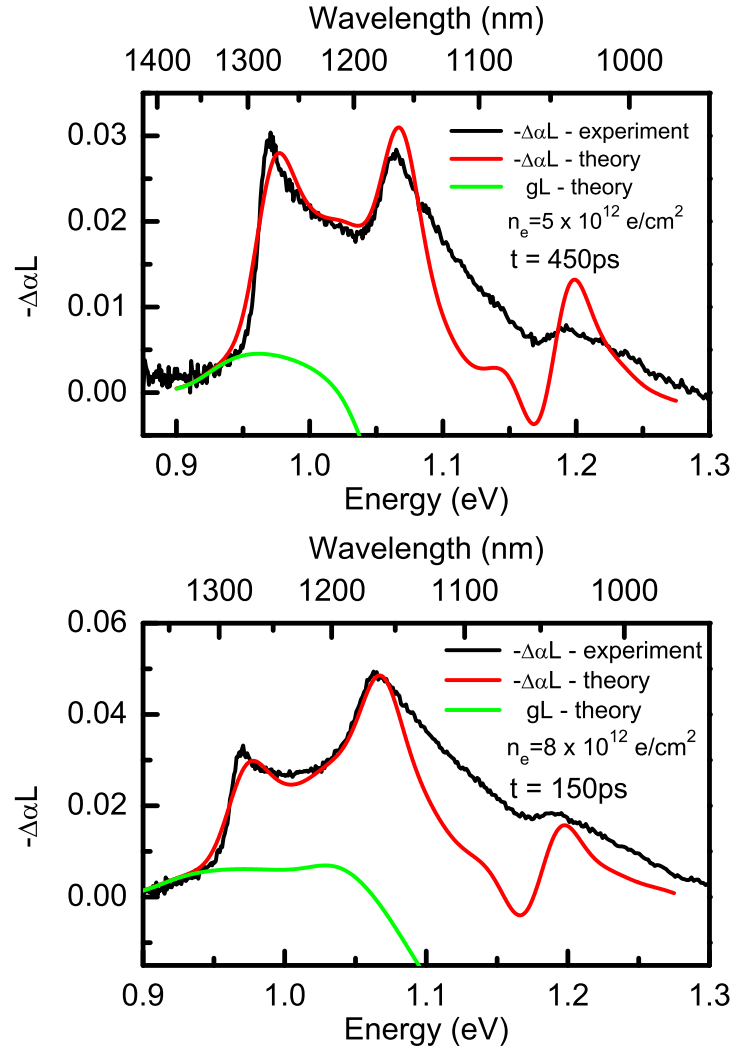


Abbildung 4.11: Vergleich von experimentellen und theoretisch berechneten differentiellen Absorptionsspektren bei verschiedenen Ladungsträgerdichten und Verzögerungszeiten. In Grün die den theoretischen Spektren zugehörigen Verstärkungsspektren. Die Anregungsdichte beträgt $9 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.

kung. So ist konsistent mit dem Experiment unterhalb der Gleichgewichtsbandkante nur eine leichte Erhöhung der Verstärkung auf 2000 cm^{-1} zu beobachten. Auf der Hochenergieseite kommt es zu einer deutlichen Verbreiterung des Spektrums und das Maximum der theoretisch ermittelten optischen Verstärkung schiebt von $0,96 \text{ eV}$ bei $5 \cdot 10^{12}$ Elektronen pro cm^2 zu $1,03 \text{ eV}$ bei $5 \cdot 10^{12}$ Elektronen pro cm^2 . Der

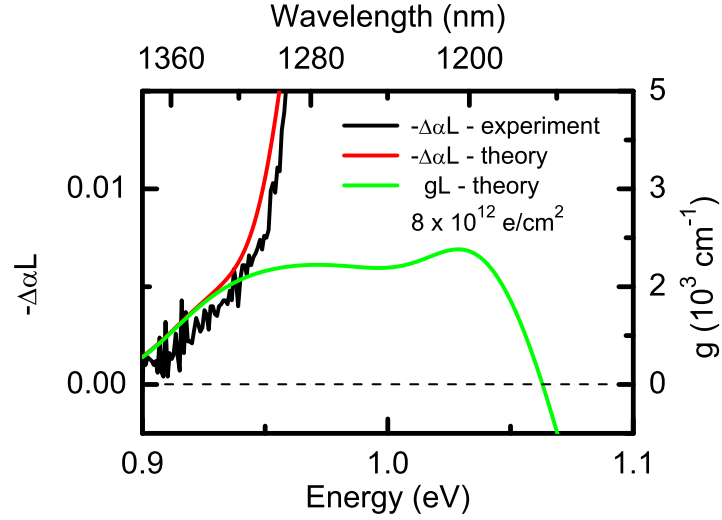


Abbildung 4.12: Theorie und Experiment zur optischen Verstärkung nahe der Bandkante. Ein positives $-\Delta\alpha L$ unterhalb der Bandkante gibt direkt die optische Verstärkung wieder.

Transparenzpunkt liegt in der theoretischen Rechnung bei 1,063 eV. Diese Übergangsenergie ist bereits dem LB2-SL2-Übergang zuzuordnen. Der überproportional starke Anstieg bei diesem Übergang im Experiment ist dementsprechend einer starken optischen Verstärkung aus dem ersten angeregten Zustand zuzuordnen. Auf Grund der höheren Zustandsdichte können hier deutlich größere Verstärkungswerte als an der fundamentalen Bandkante erzielt werden.

In einem Vergleich dieser beiden Spektren zeigt sich eine große Übereinstimmung im Bereich der fundamentalen Bandkante. Bis einschließlich des LB2-SL2-Übergangs liegen die Abweichungen für $-\Delta\alpha L$ im Bereich von kleiner 0,003 und damit im Rahmen der Messungenauigkeit. Das zugehörige Verstärkungsspektrum (in Abbildung 4.9 grün eingezeichnet) erreicht eine effektive Verstärkung gL von bis maximal 0,0045 bei einer Übergangsenergie im Bereich 0,96 eV. Dieses entspricht unter Berücksichtigung der Gesamtdicke der Quantenfilme von 31,2 nm einem optischen Materialgewinn von 1500 cm^{-1} . Bei 0,945 eV ist dieser Wert etwas geringer im Bereich von 1200 cm^{-1} . Diese Werte stimmen mit denjenigen überein, die im vorigen Abschnitt im Bereich knapp unterhalb der Gleichgewichtsbandkante ermittelt werden. Abbildung 4.12 verdeutlicht diese Übereinstimmung und zeigt die Gültigkeit der Annahme des vorigen Abschnitts, dass ein positives $-\Delta\alpha L$ unterhalb der Bandkante direkt als optische Verstärkung zu werten ist. Oberhalb des LB2-SL2-Übergangs nimmt die Übereinstimmung zwischen Experiment und

Theorie ab.

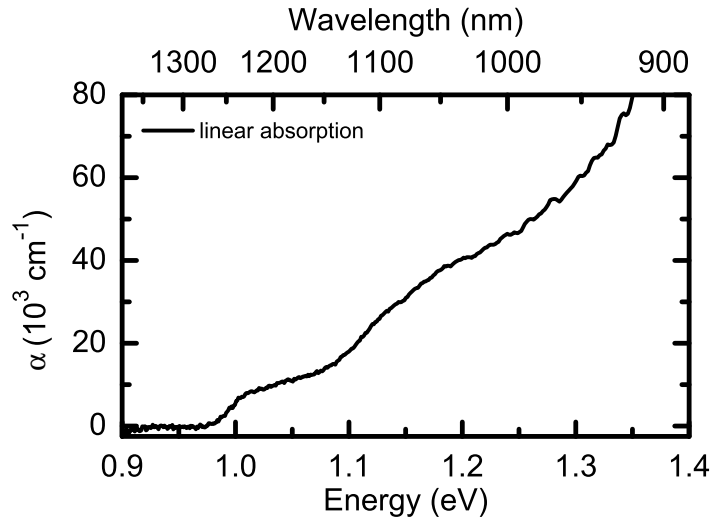


Abbildung 4.13: *Lineare Absorption der Probe 13340.*

4.3 MOVPE-gewachsene 7,5 nm-(GaIn)(NAs)-MQW

Zur weiteren Klärung der Verstärkungsdynamik von (GaIn)(NAs)-Heterostrukturen wurde eine Probe bestehend aus insgesamt fünf Quantenfilmen von jeweils 7,4 nm Dicke untersucht. Der Stickstoffanteil liegt bei 1,2 % und die Konzentration des Indiums bei 31 %. Bestimmt wurden diese mittels Röntgenbeugung. Getrennt sind die Filme von 60 nm breiten GaAs-Barrieren und die Schichtstruktur ist zur Oberfläche mit 30 nm GaAs abgeschlossen. Nach dem eigentlichen Wachstum der Probe wurde sie einem abschließenden Ausheizzschritt unterzogen, um die Materialqualität zu optimieren. Gewachsen wurde diese mittels der metallorganischen Gasphasenepitaxie im Wissenschaftlichen Zentrum für Materialwissenschaften der Universität Marburg.

Das lineare Absorptionsspektrum dieser Probe in Abbildung 4.13 zeigt die fundamentale Bandkante dieser Probe bei einer Energie von 0,995 eV. Dies entspricht einer Wellenlänge von etwa 1245 nm. Eine Überhöhung der Absorption an der Bandkante durch Coulomb-Effekte wird nicht beobachtet und die Stufe des LB1-SL1-Übergangs ist leicht verbreitert, was auf eine gewisse verbleibende Unordnung

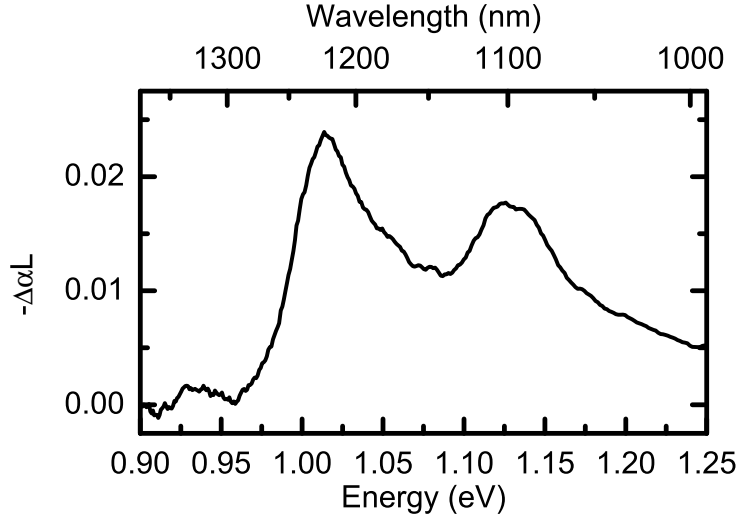


Abbildung 4.14: *Differenzielle Absorption der Probe 13340 bei niedrigen Anregungsdichten. Die Signale des Grund- und ersten angeregten Zustands sind zu erkennen.*

dieser Probe schließen lässt. Dennoch ist die Stufenform des Absorptionsspektrums der Quantenfilmstruktur deutlich ausgeprägt und die Struktur somit von hoher Qualität. Ein höherer Übergang bei etwa 1,105 meV ist dem LB2-SL2 zuzuordnen. Leichtlochartige Zustände sind auf Grund der beträchtlichen Verspannung der Quantenfilme nicht in den Quantenfilmen gebunden. Die spektrale Positionen der Übergänge werden deutlicher in einem differenziellen Absorptionsspektrum bei geringen Anregungsdichten, das in Abbildung 4.14 dargestellt ist. Für die differenziellen Absorptionsmessungen betrug die Anregungswellenlänge bei allen Experimenten 950 nm. Dies entspricht einer Energie der Photonen von 1,305 eV.

Verstärkungsspektren unter einer Anregungsdichte von $9,7 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 sind in Abbildung 4.15 dargestellt. Wie bereits bei den zuvor behandelten Proben, kommt es zu einem sehr schnellen Aufbau der Inversion und einer entsprechenden Ausbildung einer optischen Verstärkung. Das Maximum der Verstärkung liegt anfangs bei etwa 1,01 eV und beträgt $3500 \text{ cm}^{-1} \pm 1500 \text{ cm}^{-1}$. Diese relativ großen Unsicherheiten in den absoluten Werten ergeben sich aus den kumulativen Auflösungsgrenzen sowohl der linearen als auch der differenziellen Absorptionsmessung. Die Gesamtdicke der Quantenfilmschichten beträgt nur 37,5 nm so dass der Genauigkeit Grenzen gesetzt sind. Unter vorgenannten Anregungsbedingungen besteht zu kurzen Zeiten eine beträchtliche Bandbreite der optischen Verstärkung. So ist 3 ps nach der Anregung optische Verstärkung von etwa 0,96 eV auf der Niederenergieseite bis 1,084 eV, der energetischen Lage des Transparenzpunkts, zu beobach-

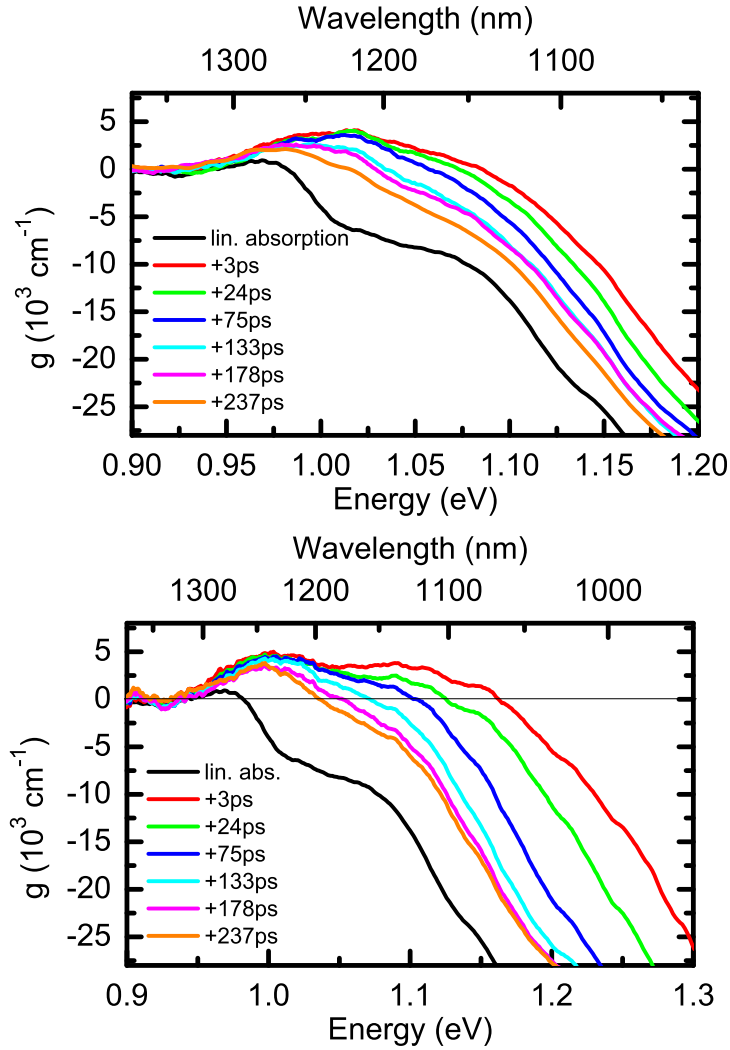


Abbildung 4.15: **Oben:** Optische Verstärkung der Probe 13340 bei $9,7 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.

Unten: Optische Verstärkung der Probe 13340 bei $6,8 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.

ten. Dies entspricht einem Verstärkungsspektrum von 150 nm Breite. Die optische Verstärkung ist hier über nahezu die gesamte Breite des LB1-SL1-Übergangs zu beobachten. Der LB2-SL2 hingegen zeigt noch keine Inversion, obwohl ein starkes Ausbleichen der Absorption bereits auf eine beträchtliche Besetzung hinweist.

In der zeitlichen Entwicklung des Signals ist zunächst ein schnelles Schieben des Transparenzpunkts, und damit der Verstärkungsbandbreite auf der 10 ps-Zeitskala

zu beobachten. Wird optische Verstärkung 3 ps nach der Anregung bis zu einer Energie von 1,084 eV beobachtet, so sinkt diese Energie auf 1,056 eV nach 75 ps und fällt weiter auf 1,033 eV nach einer Zeit von 133 ps. Die maximale Verstärkung im Energiebereich unter 1,025 eV bleibt davon zunächst unberührt. Erst nach etwa 100 ps ist auch eine merkliche Abnahme bei Energien näher der fundamentalen Bandkante zu beobachten. Die hier beobachteten Zeitskalen sind vergleichbar mit denen, die bereits beim Materialsystem (GaIn)As und auch bei MBE-gewachsenem (GaIn)(NAs) beobachtet wurden.

Bei noch höheren Anregungsdichten von $6,8 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls kommt es zu einer fortschreitenden Verbreiterung des Verstärkungsspektrums. So liegt der Transparenzpunkt unter diesen Bedingungen nach einer von 3 ps Zeitverzögerung bei 1,162 eV. Der Verstärkungsbereich unter diesen Anregungsbedingungen hat dann eine Breite von nahezu 250 nm. Die Verbreiterung geht allerdings mit einer beträchtlich beschleunigten Dynamik auf der Hochenergieseite einher. So wandert der Transparenzpunkt in 130 ps auf 1,070 eV. Ab diesem Zeitpunkt ist die Dynamik dann wieder vergleichbar derjenigen, die bereits bei niedrigeren Anregungsdichten beobachtet wurde. Die maximale Verstärkung, die unter diesen Bedingungen erzielt wird, ist nur wenig höher und beträgt $4300 \text{ cm}^{-1} \pm 1500 \text{ cm}^{-1}$. Stattdessen wird ein über weite Spektralbereiche flaches Spektrum beobachtet. Bemerkenswert ist, dass unter diesen Bedingungen eine optische Verstärkung auch bei Energien zu beobachten ist, die bereits dem LB2-SL2-Übergang zuzuordnen sind. Er liegt bei 1,11 eV, so dass die oberen 50 meV des Spektrums bereits diesem Übergang zuzuordnen sind.

4.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die intrinsische spektrale Dynamik der optischen Verstärkung sowohl von (GaIn)As, einem konventionellen III-V-Halbleiter, als auch von dem neuartigen verdünnten Nitrid (GaIn)(NAs) untersucht. Es konnte gezeigt werden, dass sie bei Anregungen im Bereich von $1 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls bei beiden Materialsystemen auf vergleichbaren Zeitskalen im Bereich von einigen 100 ps stattfindet. Eine Ausbildung optischer Verstärkung erfolgt bei Raumtemperatur nahezu instantan auf einer Zeitskala, die unterhalb der zeitlichen Auflösung des Experiments von 1 ps liegt. Nahe der Bandkante wird die Dynamik in hohem Maße durch Bandfülleffekte und Nachfütterungsprozesse aus höheren Zuständen dominiert, die eine anfängliche Relaxation der optischen Verstärkung bei niedrigen Übergangsenergien verlangsamen. In (GaIn)(NAs)-Quantenfilmen können mittels starker 100 fs-Laserimpulse große Bandbreiten der optischen Verstärkung erzielt

werden, die bis zu 250 nm Breite direkt nach der Anregung erreichen können. Diese extreme Bandbreite wird teilweise auch durch die Inversion des LB2-SL2 erreicht. Ein Vergleich mit der Theorie zeigt eine gute Übereinstimmung zwischen Experiment für den Fall hoher Ladungsträgerdichten von $5 \cdot 10^{12}$ Elektronen pro cm^2 und mehr.

5 GaP-basierende Halbleiterlaser

Das wirtschaftlich und technologisch bei weitem bedeutsamste Halbleitermaterial ist Silizium. Mit Ausnahme weniger spezialisierter Anwendungsgebiete dominiert es den gesamten Markt der Mikroelektronik. Dies liegt vor allem an der allgemein hochentwickelten Prozessierungstechnologie und der Verfügbarkeit großer 30cm-Wafer, was Bauelemente auf Silizium wesentlich preiswerter macht als alle Alternativen. Seine Anwendungsmöglichkeiten in der Optoelektronik sind dagegen bisher begrenzt. Es gehört zu den sogenannten indirekten Halbleitern, bei denen die Extrema der Leitungs- und Valenzbänder nicht bei demselben k -Vektor zu finden sind. Strahlende Rekombinationsprozesse sind hier nur unter Beteiligung eines Phonons oder von Störstellen möglich. Die Effizienz der Lichtemission verschlechtert sich dadurch dramatisch (siehe auch Abb. 5.1). Dementsprechend sind zwar Detektoren wie CCDs und Photodioden auf Siliziumbasis verfügbar, nicht aber Laserdioden (LD). Hier greift man auf direkte III-V-Halbleiter wie z.B. GaAs oder InP zurück. Trotz dieser Schwierigkeiten gibt es seit langem Bestreben auch auf Silizium effiziente Lichtemitter herzustellen. Solche würden die Möglichkeit eröffnen, die Mikroelektronik mit der Optoelektronik zu verbinden zu einer Integrierten Optoelektronik (OEIC¹), die eine Vielzahl neuer Anwendungsfelder eröffnen würde.

¹engl. für *Opto-Electronic Integrated Circuit*

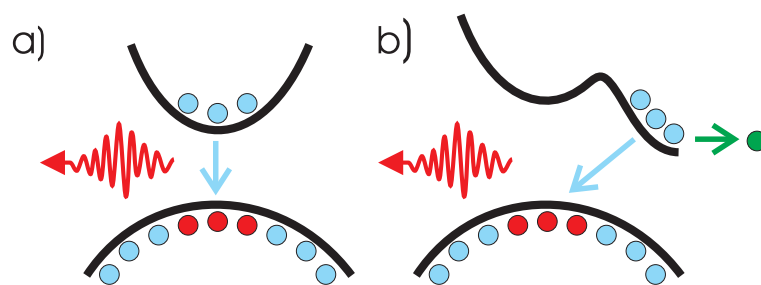


Abbildung 5.1: Strahlende Rekombination bei a) einem direkten und b) einem indirekten Halbleiter. Bei letzterem ist neben Elektron (blau) und Loch (rot) zusätzlich noch ein Phonon (grün) beteiligt. Der Wechselwirkungsquerschnitt reduziert sich.

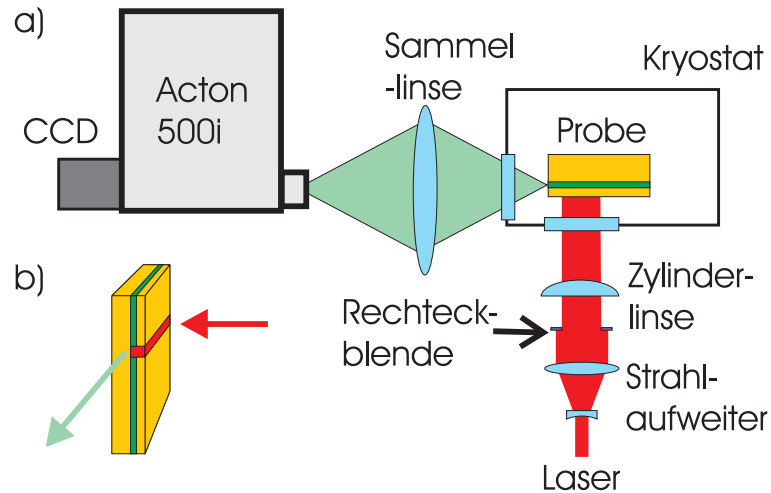


Abbildung 5.2: a) Versuchsaufbau für optische Messungen an GaP-basierten Proben.
b) Schema der Anregungsgeometrie.

Insbesondere ist hier die Möglichkeit zu nennen, optische Signale direkt auf einem einzigen, preiswerten Chip generieren, detektieren und verarbeiten zu können.

Ein Ansatz zu diesem Ziel ist es, auf Silizium einen anderen, direkten Halbleiter heteroepitaktisch aufzuwachsen, der als aktives Medium einer Laserdiode verwendet werden kann. Aus den bereits in Abschnitt 3.4.1 ausgeführten Gründen muss dieses Material eine ähnliche Gitterkonstante wie Silizium ($a = 5,431 \text{ \AA}$) aufweisen, um das Wachstum hochqualitativer Schichten zu ermöglichen. Die einzigen zur Verfügung stehenden Halbleiter, die sich hier anbieten, sind die binären III-V-Halbleiter Galliumphosphid (GaP) und Aluminiumphosphid (AlP), deren Gitterkonstanten von $5,4635 \text{ \AA}$ bzw. $5,4505 \text{ \AA}$ betragen [Mad]. So ist es bekannt, dass diese Materialien in hoher Qualität auf Silizium abgeschieden werden können [Yon02]. Allerdings sind GaP und AlP ebenfalls indirekte Halbleiter und für Laserdioden somit ebenso ungeeignet wie Silizium selbst.

Ein Ausweg aus diesem Dilemma bieten gegebenenfalls komplexere ternäre und quaternäre III-V-Halbleiter mit direkter Bandlücke. So gehen Legierungen von GaP mit As zu $\text{GaP}_{1-x}\text{As}_x$ und In zu $\text{Ga}_{1-y}\text{In}_y\text{P}$ für hinreichend große Arsen- (45 %) bzw. Indiumkonzentrationen (67 %) wieder zu einer direkten Bandlücke über. Allerdings sind auf Grund der beträchtlichen Gitterfehlanspannungen die integrierten kompressiven Verspannungen viel zu groß für ein Wachstum hochqualitativer Schichten. Man hat es also prinzipiell mit einem ähnlichen Problem zu tun, wie es beim Wachstum von hochverspannten (GaIn)As-Schichten auf GaAs

auftritt. Analog zu (GaIn)(NAs) bietet sich auch hier eine Zugabe von Stickstoff an, um diese Verspannungen zu reduzieren. Wie auch in Ga(NAs) führt der Stickstoffeinbau in GaP zu einer starken Modifikation der elektronischen Struktur des Materials, einschließlich der Ausbildung lokalisierter Zustände und einer Rotverschiebung der Bandkante bei höheren Stickstoffkonzentrationen. Allerdings wird dies durch den Umstand verkompliziert, dass es sich bei GaP um einen indirekten Halbleiter handelt. Diese Effekte sind weniger gut verstanden als die in Ga(NAs) und können an dieser Stelle nicht im Detail diskutiert werden. Für eine ausführliche Betrachtung sei auf [Kun05] hingewiesen. Ein alternativer Ansatz ist es, auf ein phosphorhaltiges Materialsystem vollkommen zu verzichten. Stattdessen wird ein zumindest ternärer Mischkristall verwendet, dessen Gitterkonstante hinreichend ähnlich derjenigen von Silizium ist, um epitaktisch abgeschieden zu werden. Hierzu bietet sich das bereits in Kapitel 3 ausführlich beschriebene Ga(NAs) an.

Im weiteren sollen als wichtiger Zwischenschritt zum Fernziel von siliziumbasierten Halbleiterlasern die Lichtemissionseigenschaften von Quantenfilmstrukturen aus Ga(NAs) und Ga(NPAs) untersucht werden, die auf GaP-Substraten abgeschieden wurden. Das Hauptaugenmerk liegt auf der Fragestellung, ob diese Strukturen mittels optischer Anregung zu Laseraktivität angeregt werden können, ein wichtiger Schritt, bevor man zu etwaigen elektrisch gepumpten Strukturen übergehen kann.

Die Messungen wurden in einem Aufbau durchgeführt, wie er in Abbildung 5.2 gezeigt ist. Die Proben wurden zunächst in etwa 6 mm breite Streifen gespalten und dann in einem Kühlfingerkryostaten montiert, der eine Kontrolle der Temperatur von Raumtemperatur bis hinab zu etwa 10 K erlaubt. Eine Anregung der Proben erfolgte bei einer Wellenlänge von 800 nm (1,55 eV Photonenenergie) mit 120 fs langen Impulsen. In den GaP-Barrieren wurden keine Ladungsträger erzeugt, da die Bandlücke dieses Materials bei 2,27 eV für indirekte und 2,78 eV für direkte Übergänge liegt [Mad]. Die Repetitionsrate des Lasers beträgt 1 kHz, was die Aufheizung der Probe durch die optische Anregung begrenzt. Der Strahl selbst wurde zunächst über einen 4:1 Strahlaufweiter aufgeweitet und mittels einer geeigneten Blende zu einem Rechteckprofil geformt. Dabei wurde insbesondere darauf geachtet, dass die Intensitätsverteilung möglichst homogen über den verbleibenden Strahl ist. Mittels einer Zylinderlinse wurde dieser dann zu einem gleichmäßigen, in etwa 50 μm breiten Strich auf der Probe fokussiert, der die gesamte Länge der Probe überstrich. Die Emission aus der Seitenfacette der Probe wurde dann mittels einer Linse eingefangen und mit dem bereits in Abschnitt 2.2 beschriebenen Gitterspektrometer Acton 500i spektral aufgelöst. Die Detektion erfolgte mittels einer Si-CCD, da diese mit 24 μm kleinere Pixel aufweist als die InGaAs-Photodiodenzeile mit 50 μm und so eine bessere Spektralauflösung möglich ist. Weiterhin wurden

die verwendeten Einsammellinsen so gewählt, dass die numerische Apertur des Spektrometers möglichst gut ausgenutzt wurde.

5.1 Emission von Ga(NPAs) /GaP-Heterostrukturen

Im Rahmen dieser Arbeit wurde zunächst eine Ga(NAsP)/GaP-Mehrfachquantenfilmstruktur (MQW²) mit der Bezeichnung 22991 auf ihre Photolumineszenz hin untersucht. Die hier untersuchte Probe besteht aus fünf 8 nm dicken Quantenfilmen die durch 50 nm breite GaP-Barrieren getrennt sind. Eingebettet ist die aktive Schicht in die Mitte einer Wellenleiterstruktur (SCH³) aus insgesamt 3 μm dickem $\text{Al}_{0,23}\text{Ga}_{0,77}\text{P}$, welche einen guten Überlapp der Quantenfilme mit dem propagierenden Lichtfeld gewährleisten soll. Stickstoff- und der Phosphorkonzentrationen wurden durch Röntgenbeugungsmessungen (XRD) bestimmt und betragen $(3 \pm 0,5) \%$ bzw. $(8 \pm 3) \%$. Konzipiert und gewachsen wurde diese von Dr. Bernadette Kunert aus der Arbeitsgruppe von Dr. Wolfgang

²engl. für *Multi-Quantum Wells*

³engl. *Seperate Confinement Heterostructure*

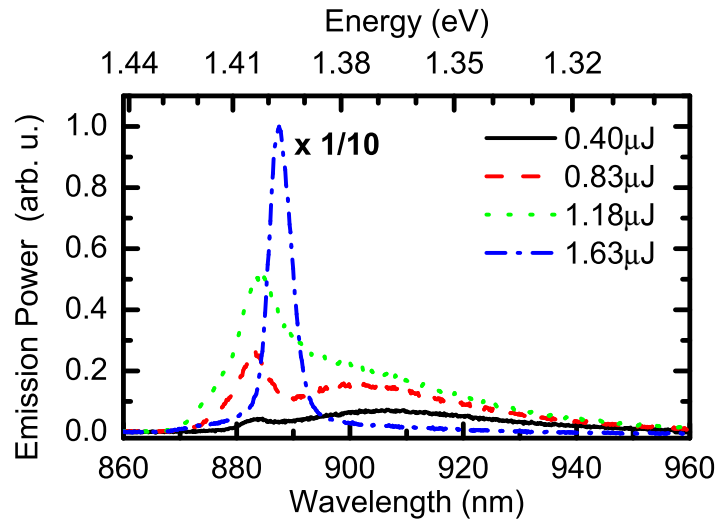


Abbildung 5.3: *Emission einer 6 mm breiten Ga(NPAs)-Probe 22991 bei 15K. Es zeigt sich ein deutliches Schwellenverhalten als Funktion der Anregungsleistung. Oberhalb der Schwelle steigt die Emissionsleistung stark an und das Spektrum wird deutlich schmäler.*

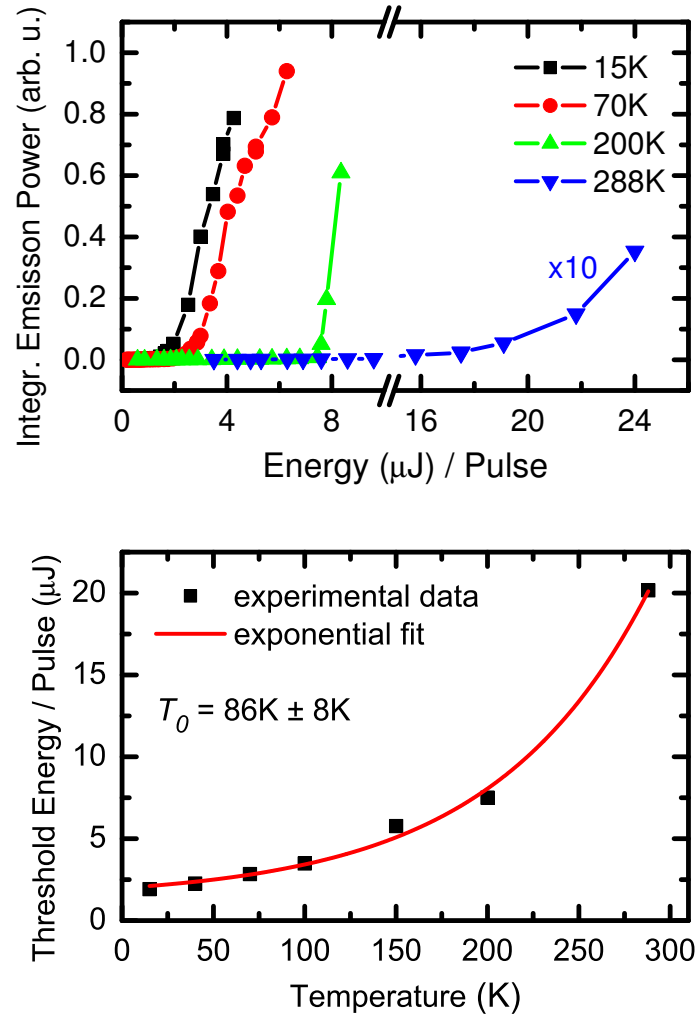


Abbildung 5.4: **Oben:** Integrierte Emissionsleistung der 6 mm breiten Probe 22991 als Funktion der Pumpenergie pro Impuls. Das Schwellenverhalten kann bis einschließlich Raumtemperatur verfolgt werden.

Unten: Laserschwelle der Probe 22991 bei verschiedenen Temperaturen. Es zeigt sich eine exponentielle Zunahme mit einer charakteristischen Temperatur von 86 K.

Stolz vom Wissenschaftlichen Zentrum für Materialwissenschaften der Universität Marburg. Für nähere Details zum Wachstum sei auf [Kun05] hingewiesen.

In Abbildung 5.3 ist die Emission der 6 mm breiten Probe bei 20 K zu sehen. Bei geringen Anregungsleistungen ist deutlich eine breite PL der Probe bei 910 nm zu erkennen. Die Linie ist stark asymmetrisch mit weiten Ausläufern in den nie-

der energetischen Bereich, was auf starke Lokalisierungseffekte hindeutet. Die volle Halbwertsbreite (FWHM) beträgt in etwa 63 meV. Bei einer Erhöhung der Anregungsleistung bildet sich eine Signatur auf der Hochenergieseite der Lumineszenz bei 887 nm heraus, die sprunghaft in der Leistung zunimmt und das Spektrum dominiert. Dies geht einher mit einer Verschmälerung der Emission auf etwa 7,7 meV Linienbreite FWHM. Betrachtet man die spektral integrierte Emissionsleistung als Funktion der Pumpleistung, so ist ein klares Schwellenverhalten festzustellen, wie in Abbildung 5.4 deutlich zu erkennen. Ein solches Schwellenverhalten der Ausgangsleistung bei einer gleichzeitigen Verschmälerung des Emissionsspektrums ist typisch für einen Laser, der über seine Laserschwelle hinaus gepumpt wird. Eine Variation der Temperatur zeigt zudem, dass dieses Schwellenverhalten nicht nur unter kryogenen Bedingungen auftritt, sondern auch bei Raumtemperatur noch vorhanden ist. Die Schwelle nimmt, wie aus der unteren Abbildung 5.4 ersichtlich, exponentiell mit einer charakteristischen Temperatur T_0 von $86\text{ K} \pm 8\text{ K}$ zu. Ein solcher Wert ist in etwa vergleichbar mit den Werten, die auch für andere Halbleiterlaser gefunden werden.

5.2 Emission von Ga(NAs) /GaP-Heterostrukturen

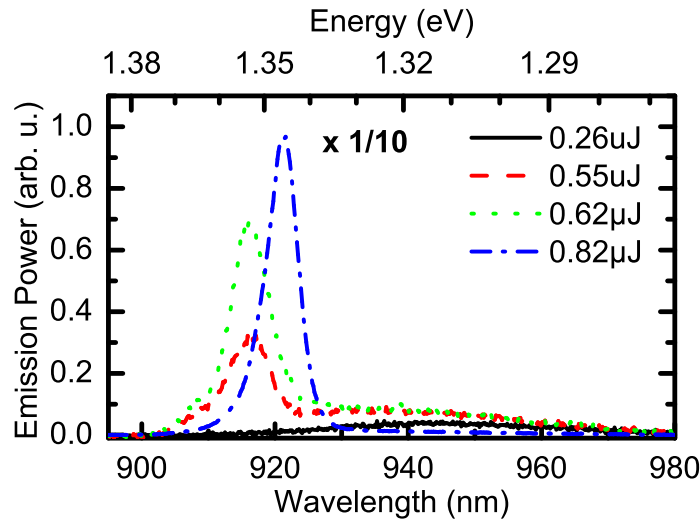


Abbildung 5.5: *Emission einer 6 mm breiten Ga(NAsP)-Probe 22992 bei 15 K. Es zeigt sich ein deutliches Schwellenverhalten als Funktion der Anregungsleistung. Oberhalb der Schwelle steigt die Emissionsleistung stark an und das Spektrum wird deutlich schmaler.*

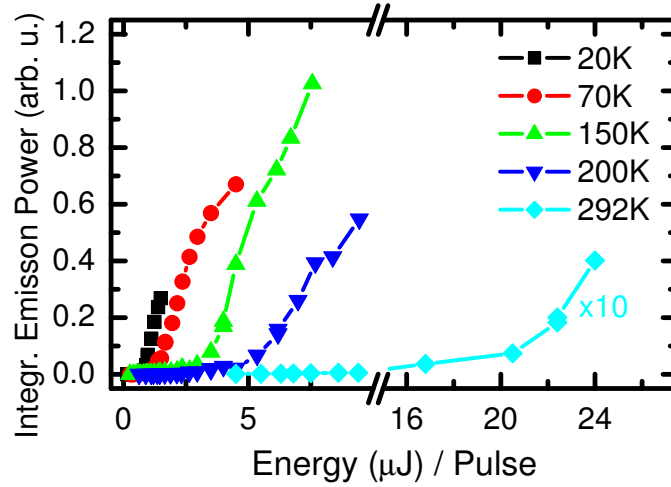


Abbildung 5.6: Integrierte Emissionleistung der 6 mm breiten Probe 22992 als Funktion der Pumpenergie pro Impuls. Ähnlich wie bei der Probe 22991 ist ein Schwellenverhalten bis einschließlich Raumtemperatur zu beobachten.

Als alternatives Materialsystem zu der Ga(NPAs)-Struktur wurde eine Probe untersucht, die an Stelle der Ga(NPAs)-Quantenfilme Ga(NAs) als aktives Medium benutzt. Derartige Strukturen wurden bereits in der Vergangenheit realisiert, jedoch nie in einer Qualität, die für Laseranwendungen ausreichend gewesen wäre [Kon96a]. Diese Probe mit der Nummer 22992 ist weitestgehend identisch mit der Probe 22991, allerdings sind die Quantenfilme phosphorfrei und nur 4,5 nm dick. Der Stickstoffgehalt ist auch hier ($3 \pm 0,5$) %. Vorteilhaft bei der Verwendung von Ga(NAs) als aktivem Material ist, dass die Physik dieses Materials wesentlich besser verstanden ist als die des quaternären Ga(NAsP). Dieses erlaubt ein wesentlich gezielteres Bauteildesign mit vorhersagbareren Eigenschaften. Zudem besteht nicht die Unsicherheit, bei welchen Stickstoff- und Phosphorgehalten der Übergang vom direkten zum indirekten Halbleiter stattfindet. Nachteilig wirkt sich jedoch die in Abschnitt 3.3 diskutierte Metastabilität des Materials aus. Da für Laseranwendungen außerordentliche Anforderungen an die Materialqualität gestellt werden, können Ga(NAs)-Filme nur mit relativ kleinen Stickstoffkonzentrationen bis etwa 4 % genutzt werden. Durch die große Gitterfehlpassung zu GaP⁴ führt dieses zu einer hochgradigen Verspannung.

Wie in den Abbildungen 5.5 und 5.6 zu sehen, ist das Emissionsverhalten der Probe 22992 dem der phosphorhaltigen Probe 22991 ähnlich. Es zeigt sich ebenfalls ein

⁴Die Gitterfehlpassung $\Delta a/a$ beträgt etwa 3,3 % für $\text{GaN}_{0,04}\text{As}_{0,96}$ auf GaP. Für eine vollständige Gitteranpassung sind etwa 20 % Stickstoff notwendig [Kon96a].

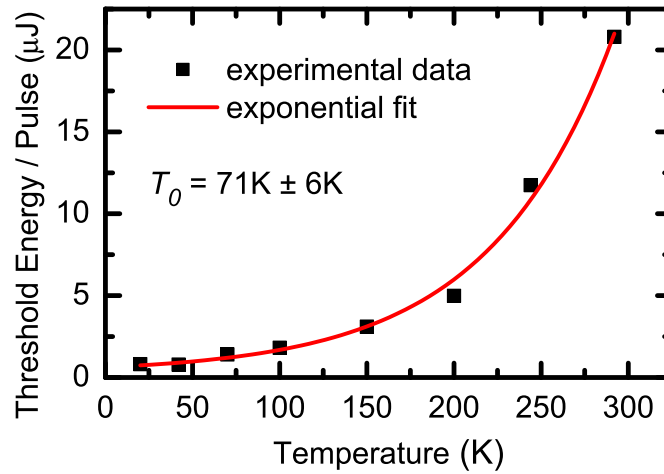


Abbildung 5.7: Temperaturcharakteristik der Probe 22992. Die charakteristische Temperatur T_0 liegt bei 71 K.

deutliches Schwellenverhalten mit einer deutlichen Abnahme der Linienbreite auf etwa 8,5 meV oberhalb der Schwelle. Die Photolumineszenz unterhalb der Schwelle ist auch hier deutlich gegenüber der Laseremission rotverschoben, in diesem Fall um rund 25 nm. Das Maximum oberhalb der Schwelle liegt bei 920 nm bei 20 K und 965 nm bei Raumtemperatur. In einem direkten Vergleich bei niedrigen Temperaturen zeigt die phosphorfreie Probe 2291 eine niedrige Laserschwelle von $0,82 \mu\text{J} / \text{Impuls}$ verglichen mit $2,1 \mu\text{J} / \text{Impuls}$ bei den Ga(NPAs)-Quantenfilmen. Es kann aus diesen Werten jedoch nicht auf eine generelle Überlegenheit von Ga(NAs) als Lasermaterial auf GaP geschlossen werden. Die Abweichungen der Schwelle sind mit einem Faktor von rund 2,5 relativ gering und liegen im Rahmen dessen, was man selbst bei verschiedenen Proben ein und desselben Materialsystems beobachtet. Zudem können Schwelldichten durch eine Vielzahl von Parametern beeinflusst werden, die nichts mit den grundsätzlichen Eigenschaften des Materialsystems zu tun haben. Beispielsweise ungleichmäßig gute Spaltkanten oder leichte makroskopische Inhomogenitäten der Schichtqualität auf Grund der sehr großen Probengeometrie sind hier zu nennen.

Aussagekräftiger ist stattdessen die Temperaturcharakteristik. So zeigt eine Auswertung der Temperaturabhängigkeit der Laserschwelle im Vergleich zur Probe 22991 eine deutlich geringere charakteristische Temperatur T_0 von $71 \text{ K} \pm 6 \text{ K}$. Als Folge davon sind die Schwelldichten bei Raumtemperatur nahezu identisch. Eine solche geringere charakteristische Temperatur legt analog zu den Materialsystemen (GaIn)(PAs) und (GaIn)(NAs) die Vermutung nahe, dass der Ladungsträgereinschluss in den Quantenfilmen aus Ga(NAs) weniger effizient ist als in denje-

ningen aus Ga(NPAs), möglicherweise auf Grund kleinerer Bandkantendiskontinuitäten. Dieses würde aber einen intrinsischen Nachteil des Systems Ga(NAs)/GaP bedeuten, wohingegen die höheren Schwellen bei Ga(NPAs) durch eine verbesserte Epitaxie und Probenpräparation vermindert werden könnten.

5.3 Verstärkungsspektren von Ga(NPAs)/GaP nach der Hakki-Paoli-Methode

Auf Grund der vorteilhafteren Temperaturcharakteristik der Ga(NPAs)-Heterostruktur 22991 und den grundsätzlichen konzeptionellen Vorteilen eines quaternären Systems soll die Emissionscharakteristik dieses Materials genauer analysiert werden. Zu diesem Zweck wurde daher zusätzlich zu dem 6 mm breiten Stück der Probe auch noch eines von 0,45 mm Breite untersucht. In Abbildung 5.8 ist das Emissionsspektrum dieser schmalen schmalen Probe bei 20 K knapp unterhalb und knapp oberhalb der Schwelle gezeigt. Es zeigt sich, dass die spektral schmale Emission über der Schwelle in deutliche Moden aufgespalten ist, genau wie man es von einem Laser erwartet. Das breite Spektrum bei niedrigen Anregungsdichten dagegen ist nicht strukturiert. Der experimentell ermittelte Modenabstand beträgt 0,262 nm. Vergleicht man dies mit dem Abstand $\Delta\lambda$ der Fabry-Perót-Moden eines Resonators der Länge L , welcher durch

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda^2}{2nL} \quad (5.1)$$

gegeben ist, so erhält man eine gute Übereinstimmung für einen Brechungsindex n von etwa 3,36. Im Rahmen der Messgenauigkeit ist dies konsistent mit den Literaturwerten, welche Werte um 3,2 bei Raumtemperatur angeben [Mad]. Natürlich ist zu beachten, dass es sich hier um einen effektiven Brechungsindex der Struktur bestehend aus den Quantenfilmen, den Barrieren und der Wellenleiterschicht handelt.

Das sogenannte Hakki-Paoli-Verfahren stellt nun einen Zusammenhang zwischen der Modulationstiefe des Modenspektrums und dem modalen Gewinn $G(\lambda)$ her [Hak73, Hak75]. Bei diesem Verfahren wird ausgenutzt, dass das Modenspektrum durch Interferenz des im Resonator umlaufenden Lichtfelds erzeugt wird. Im Falle eines rein transparenten Mediums entspricht dieses den Fabry-Perót-Moden und die Modulationstiefe ist nur über das Reflexionsvermögen der Resonatorspiegel gegeben, also in diesem Falle dem Reflexionsvermögen der Endfacetten

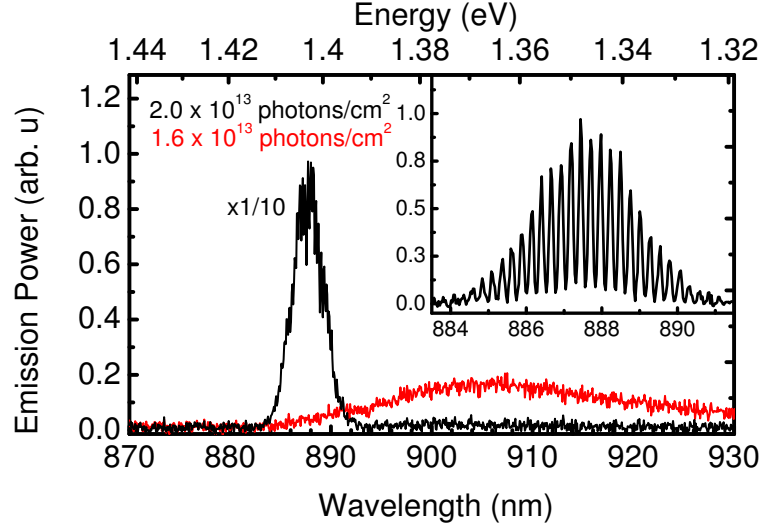


Abbildung 5.8: *Großes Bild: Emission an einem 0,45 mm breiten Laserbarren der Probe 22991 im Bereich der Laserschwelle.*

Kleines Bild: Modenstruktur der Emission bei einer Anregungsdichte von $2 \cdot 10^{13}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.

[Hec01, Eic93]. Befindet sich innerhalb des Resonators ein absorbierendes oder verstärkendes Medium, so wird das Verhältnis von Maxima zu Minima modifiziert, und der modale Gewinn kann über

$$G(\lambda) = \frac{1}{L} \ln \left(\frac{\sqrt{P^+} - \sqrt{P^-}}{\sqrt{P^+} + \sqrt{P^-}} \right) - \frac{1}{2L} \ln(R_1 R_2) \quad (5.2)$$

berechnet werden. In dieser Formel sind P_+ und P_- die detektierten Leistungen in den Maxima bzw. Minima des Spektrums und L die Länge des Resonators, in diesem Fall 0,45 mm. R_1 und R_2 sind das Reflexionsvermögen der beiden Facetten, die über die Relation $R_i = \left(\frac{n_1 - n_0}{n_1 + n_0} \right)^2$ zu jeweils 29,3 % angesetzt werden. Der Brechungsindex n wurde, wie oben angegeben, zu 3,36 angenommen.

In Abbildung 5.9 ist das Emissionsspektrum und das zugehörige modale Verstärkungsspektrum der Probe 22991 bei 20 K und einer Anregungsdichte von $2,7 \cdot 10^{13}$ Photonen/ cm^2 zu sehen. Es zeigt sich ein Maximum der Verstärkung von $12,7 \text{ cm}^{-1}$ bei einer Wellenlänge von etwa 891 nm. Dies bestätigt die Interpretation des Schwellenverhaltens der Emission als Laseraktivität. Es ist jedoch anzumerken, dass das Maximum der Laserlinie bei etwa 887 nm liegt, einem Wert, der eher am gemessenen Transparenzpunkt aus Abbildung 5.9 liegt. Dies ist vermutlich darauf zurückzuführen, dass die Hakki-Paoli-Methode intrinsisch eine Gleichgewichtsme-

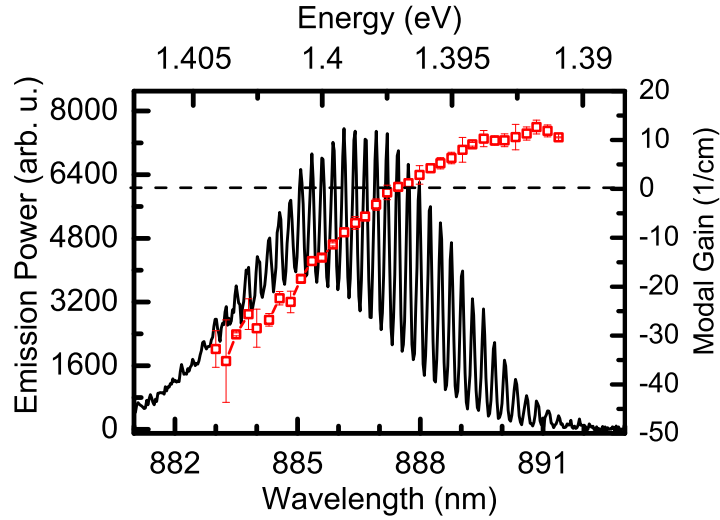


Abbildung 5.9: *Modales Verstärkungsspektrum der Probe 22991 bei einer Anregungsdichte von $2,7 \cdot 10^{13}$ Photonen pro cm^2 und Impuls. Gestrichelt ist die Transparenz $G(\lambda) = 0$ eingezeichnet.*

thode ist, bei der insbesondere angenommen wird, dass die modale Verstärkung sich mit der Zeit nicht ändert. Durch die Anregung mit ultrakurzen Impulsen ist diese Annahme sicherlich nicht gegeben, so dass transiente Verstärkungseffekte zu niedrigeren ermittelten Werten für $G(\lambda)$ führen. Hinzu kommt, dass das spektrale Auflösungsvermögen der Detektion beschränkt ist. Obwohl die Spektren bereits in zweiter Ordnung mit einem 6001/mm-Gitter gemessen wurden, beträgt der Abstand von Maximum zu Minimum gerade einmal vier bis fünf Pixel des Detektors. Als Folge kommt es zu einer Überschätzung der relativen Signalstärke in den Minima, welche sich in einem zu kleinen Wert der modalen Verstärkung auswirkt. Die hier ermittelten Werte müssen also als Abschätzung nach unten gewertet werden, wobei die realen Werte durchaus deutlich höher liegen können. Dies zeigt sich auch deutlich darin, dass eine Berechnung der Verstärkung aus dem Spektrum bei einer Anregungsdichte von $2,0 \cdot 10^{13}$ Photonen pro cm^2 aus Abbildung 5.8 auch zu Werten führt, die teilweise über 20 cm^{-1} liegen.

5.4 Zusammenfassung und Ausblick

Es konnte nachgewiesen werden, dass sowohl Ga(NPAs) als auch Ga(NAs) geeignet sind, Laserstrukturen auf Basis von GaP zu realisieren. Die bislang erzielten Laserschwellen liegen bei beiden Materialien bei etwa vergleichbaren Werten, was nochmals eindeutig zeigt, dass auch das phosphorbasierende System eine direkte Band-

lücke aufweist. Insgesamt scheint das Materialsystem Ga(NPAs) das nach diesen ersten Ergebnissen vielversprechendere Material zu sein. Die Zugabe von Phosphor verringert die Verspannung bezüglich GaP und erlaubt so eine größere Variabilität der Strukturparameter, da sich in gewissen Grenzen analog zu (GaIn)(NAs) die Lumineszenzwellenlänge und die Verspannung unabhängig von einander wählen lassen. Modale Verstärkung von wenigstens 20 cm^{-1} bei 20 K konnte nachgewiesen werden und klares Schwellenverhalten auch bei Raumtemperatur deutet auf Laseraktivität hin. Auch bei phosphorfreen Strukturen wird Laseraktivität bei Raumtemperatur beobachtet. Das Entwicklungspotenzial scheint hier jedoch geringer zu sein. Eine Verringerung des Stickstoffgehalts zur Verbesserung der Materialqualität würde die Verspannung auf inakzeptable Werte ansteigen lassen, während bei einer Erhöhung zur Verminderung der Gitterfehlانpassung die dazu notwendigen Wachstumsparameter die Defektdichte stark ansteigen lassen würden. Hinzu kommt, dass das Ga(NPAs) den Vorteil besitzt, bei Wellenlängen unterhalb 900 nm zu emittieren. So operieren optische Kurzstreckennetzwerke heutzutage bei 850 nm. Es besteht die Hoffnung, mittels Ga(NPAs) auf GaP (und damit Si) diese Wellenlängen erreichen zu können, was unmittelbare kommerzielle Anwendungen ermöglichen würde. Mit Ga(NAs) ist dieser Wellenlängenbereich jedoch prinzipiell nicht erreichbar, da der Stickstoffeinbau in GaAs sich in einer Bandlückenreduktion auswirkt. Auf Grund der Bandlücke von GaAs von 1,42 eV bei Raumtemperatur liegt die Emission von Ga(NAs) damit immer deutlich oberhalb 870 nm. Auch das höhere T_0 von 86 K gegenüber 71 K legt eine Präferenz von Ga(NPAs) nahe.

6 Braggstrukturen

Bei sämtlichen in dieser Arbeit vorgestellten differentiellen Transmissionsexperimenten wurde davon ausgegangen, dass Änderungen der Transmission im wesentlichen durch Änderungen der Absorption in den Quantenfilmen hervorgerufen werden. Lediglich leichte Korrekturen wurden gemacht, um Substrateffekte zu korrigieren, wie in Abschnitt 2.3 beschrieben. Insbesondere wurde die Annahme gemacht, dass Änderungen der Reflexion an den Grenzflächen zwischen den Quantenfilmen und den Barrieren vernachlässigt werden können. In der Tat treten Reflexionen zwischen verschiedenen Grenzflächen vor allem dann auf, wenn ein großer Brechungsindexkontrast besteht. Wie groß diese Reflexion ist, hängt von Wellenlänge, Einfallswinkel und Polarisation des Lichts ab und kann quantitativ über die Fresnelformeln angegeben werden [Hec01, Eic93]. Im Falle senkrechten Lichteinfalls nimmt der Reflexionskoeffizient eine einfache Form an:

$$R = \left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \right)^2 \quad (6.1)$$

Mit Brechungsindizes von Halbleitern von typischerweise im Bereich 3,0 bis 3,6 und Luft mit einem Brechungsindex von 1 ergeben sich damit Reflexionen an der Luft-Halbleitergrenzfläche von rund 25 % bis 30 %. Innerhalb einer Halbleiterheterostruktur sind diese Reflexionen normalerweise wesentlich kleiner, da zum einen die Brechungsindexkontraste kleiner sind und darüber hinaus die Summe der Brechungsindizes größer ist. Das Reflexionsvermögen von Grenzflächen zwischen einzelnen Halbleiterschichten liegt damit typischerweise im Bereich 1 % oder weniger. In [Hun93] wurde gezeigt, dass ein differentiell Transmissionsspektrum dünner Halbleiterschichten im wesentlichen durch eine Änderung der Absorption hervorgerufen wird, selbst wenn die angeregte Schicht direkt an Luft angrenzt. In diesem Fall besteht ein großer Brechungsindexkontrast, bei dem induzierte Änderungen des Brechungsindex sich besonders stark auf die Reflexion auswirken.

Reflexionsvermögen können allerdings stark durch Interferenzeffekte beeinflusst werden. Befinden sich Schichtfolgen mit unterschiedlichen Brechungsindizes in Abständen von Vielfachen eines Viertels der Lichtwellenlänge ($\lambda/4$), so können je nach

	Material	Dicke (nm)
	GaAs-Substrat	bulk
*	GaAs	80 nm
	Ga _{0,61} P _{0,39} As	9,3 nm
	GaAs	80 nm
*	Ga _{0,695} In _{0,305} N _{0,008} As ₉₉₂	8,7 nm
	GaAs	80 nm
	Ga _{0,61} P _{0,39} As	9,3 nm
	GaAs	80 nm
	Al _{0,3} Ga _{0,7} As	80 nm

Tabelle 6.1: *Strukturparameter (GaIn)(NAs)-Braggstruktur 22606. Die Schichten zwischen den * wiederholen sich insgesamt 14 mal.*

Schichtfolge die propagierenden und reflektierenden Lichtmoden konstruktiv oder destruktiv miteinander interferieren. Derartige Methoden werden beispielsweise in dielektrischen Spiegeln ausgenutzt, die ein Reflexionsvermögen über 99,99 % erreichen können. Ein anderes nicht weniger wichtiges Beispiel sind Antireflexbeschichtungen, die das Reflexionsvermögen einer Oberfläche weitestgehend eliminieren können.

In Halbleiterlasern werden Quantenfilme bisweilen so angeordnet, dass sie in einem Abstand der halben Wellenlänge ($\lambda/2$) ihrer Emission angeordnet sind. Dieses kann beispielsweise geschehen, um dafür zu sorgen, dass die Quantenfilme genau in den Intensitätsmaxima des stehenden Lichtfelds eines Laseresonators angeordnet sind. Besonders für VCSEL und VECSEL¹ ist dieses von entscheidender Bedeutung, da hier die räumlichen Ausdehnungen des verstärkenden Mediums entlang der Resonatorachse nur sehr gering sind und die Quantenfilme somit relativ zum Lichtfeld optimal positioniert werden müssen. Für eine solche sogenannte Braggstruktur mit dem Schichtabstand d ist aber für eine unter dem Winkel ϑ einlaufende Lichtwelle der Wellenlänge λ die Braggbedingung m ter Ordnung erfüllt

$$m\lambda = 2d \sin(\vartheta) . \quad (6.2)$$

In einem solchen Fall besteht eine starke Kopplung der propagierenden und der reflektierten Lichtmoden und die Transmission wird gleichermaßen von Absorption und Reflexion beeinflusst. Insbesondere können je nach Schichtfolge scharfe Resonanzen und Reflexionsbänder auftreten. Die Annahme, dass DTS-Signale bei

¹Oberflächenemittender Halbleiterlaser mit externem Resonator. Engl. für *Vertical External-Cavity Surface-Emitting Laser*.

derartigen Heterostrukturen ausschließlich auf Änderungen der Absorption zurückzuführen sind, wird damit *a priori* fragwürdig. Selbst wenn die Brechungsindizes der einzelnen Schichten keine signifikanten Änderungen erfahren, so kommt es dennoch zu einer Beeinflussung der Reflexion. Durch eine Veränderung der Absorption ändern sich die relativen Amplituden der verschiedenen Lichtfelder und damit auch ihre Kopplung über Interferenz. Diese differenzielle Absorption ruft also gleichzeitig eine Änderung der Reflexion hervor. Dies kann umso stärker ausfallen, als das Reflexionsvermögen einer solchen Braggstruktur je nach Schichtaufbau durch scharfe spektrale Resonanzen geprägt sein kann. Hinzu kommt, dass es in einer solchen Struktur zu einer gegenseitigen Beeinflussung quantenmechanischer Zustände der Quantenfilme über das Lichtfeld kommt. Dieses kann zu äußerst komplexen Mechanismen der Lichtpropagation in derartigen Medien führen [Yan05c, Yan05b].

Ein Test, in wie weit eine solche Braggstruktur Auswirkungen auf die differenzielle Transmission hat, besteht darin, dass man das DTS-Experiment unter verschiedenen Einfallswinkeln durchführt. Wenn die differenzielle Transmission nur auf Absorptionsänderungen beruht, sollte nur eine sehr geringe Abhängigkeit der Signalstärke vom Einfallswinkel bestehen. Diese beruht darauf, dass bei einem schrägen Einfall die Dicke L der Quantenfilme effektiv größer wird. Es sollte sich dementsprechend eine Abhängigkeit der Form

$$-\Delta\alpha L_{eff} = -\Delta\alpha L / \cos(\vartheta_{int}) \quad (6.3)$$

ergeben. ϑ_{int} ist hier der interne Winkel der Propagation des Lichts durch die Probe. Er hängt mit dem Einfallswinkel des Lichts auf die Probe ϑ_{ext} über das Brechungsgesetz von Snellius zusammen

$$n_{Luft} \cdot \sin \vartheta_{ext} = n_{GaAs} \cdot \sin \vartheta_{int}. \quad (6.4)$$

Werden aber unter verschiedenen Winkeln stärkere Abweichungen gefunden oder aber solche, die die spektrale Form der Transmission beeinflussen, so ist davon auszugehen, dass ein nicht zu vernachlässigender Teil des DTS-Signals auf differenzieller Reflexion beruht. Bei den Proben aus den vorherigen Abschnitten wurden solche Signaturen nicht gefunden. Es kann davon ausgegangen werden, dass bei diesen normalen Strukturen die Reflexionsänderungen in der Tat vernachlässigbar sind. Im Folgenden soll nun geklärt werden, ob dieses auch für eine Heterostruktur zutrifft, die sich durch eine starke Lichtkopplung auszeichnet. Zu diesem Zweck wurde eine Bragg-Struktur bestehend aus 14 (GaIn)(NAs)-Quantenfilmen jeweils für zwei verschiedene Winkel des Lichteinfalls des Abfragestrahls untersucht. Die

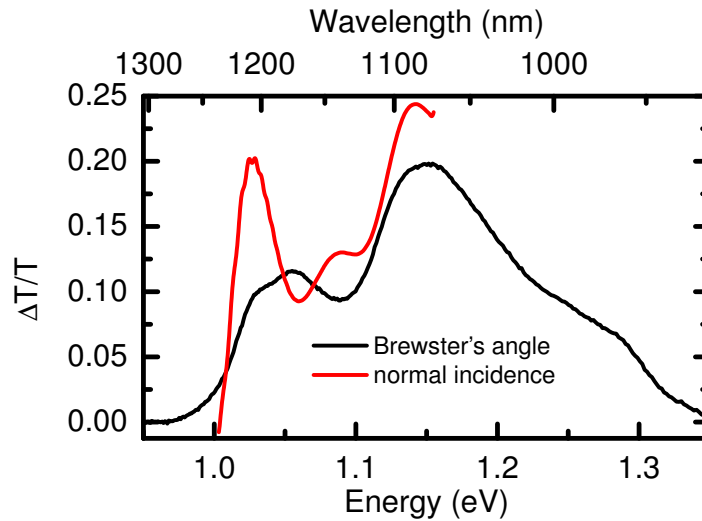


Abbildung 6.1: *Differenzielle Transmission einer Bragg-Heterostruktur bei normalem Einfallswinkel und im Brewsterwinkel. Differenzielle Reflexionsbeiträge zum Gesamtsignal führen zu deutlichen winkelabhängigen Unterschieden in spektraler Form und Stärke der differenziellen Transmission.*

Probe mit der Bezeichnung 22606 ist eine VECSEL-Teststruktur, die im Wissenschaftlichen Zentrum für Materialwissenschaften der Universität Marburg mittels der MOVPE gewachsen wurde. Die genaue Schichtstruktur kann aus Tabelle 6.1 entnommen werden. Auf Grund dieser nominellen Schichtabstände ergibt sich für den senkrechten Lichteinfall eine Resonanz bei einer Wellenlänge von 1246 nm.

Bei dieser Probe wurden nun differenzielle Spektren bei einer Anregungsdichte von rund $5 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 und Impuls und einer Anregungswellenlänge von 915 nm. Dieses entspricht einer Photonenenergie von 1,355 eV. Einmal wurde die differenzielle Transmission bei einem senkrechten Einfall gemessen und ein zweites Mal im Brewsterwinkel, bei dem Reflexion an der Oberfläche unterdrückt wird. Auf Grund des Brechungsindex von ca. 3,5 des Halbleiters beträgt dieser 74° . Allerdings reduziert sich dieser auf Grund der Gleichung 6.4 auf einen internen Winkel von 16° .

Differenzielle Transmissionsspektren etwa 10 ps nach der Anregung sind in Abbildung 6.1 dargestellt. Beim senkrechten Lichteinfall ist ein stark strukturiertes Spektrum mit einem scharfen Maximum bei einer Energie von 1,026 eV zu beobachten. Weitere Maxima treten bei 1,089 eV und 1,141 eV. Das unter dem Brewsterwinkel gemessene Spektrum zeigt dagegen deutliche Unterschiede trotz

ähnlicher Anregungsdichte. So ist das Signal auf der Niederenergieseite in etwa um den Faktor 2 kleiner und weist eine leichte Doppelpeakstruktur auf. Das erste Maximum liegt dabei bei gleicher Energie wie auch beim senkrechten Einfall, der zweite fällt jedoch mit einem Minimum der senkrechten differentiellen Transmission zusammen. Ebenso ist das zweite Maximum im senkrechten Fall bei 1,089 eV im Brewsterwinkel ein lokales Minimum des Signals. Erst die Signatur bei 1,141 eV ist wieder unabhängig vom Einfallswinkel zu beobachten. Allerdings gilt auch hier, dass im senkrechten Einfall ein stärkeres Signal zu beobachten ist. Die Lagen der relativen Maxima und Minima bleiben auch zu längeren Zeiten (≈ 1 ns) an ihren Positionen und es ergeben sich keine qualitative Änderungen.

Es kann also festgestellt werden, dass bei einer Braggstruktur mit starker Lichtkopplung differentielle Transmissionsmessungen nicht allein an der Absorption ansetzen, sondern in hohem Maße auch von differentiellen Reflexionseffekten abhängen. Eine einfache Interpretation der Experimente wird dadurch in höchstem Maße erschwert. Transiente Verstärkungsmessungen wie in Kapitel 4 sind mit solchen Strukturen nicht trivial möglich. Stattdessen ist ein detaillierter Vergleich mit theoretisch ermittelten Spektren von Nöten. Allerdings war die DTS in Braggstrukturen bislang noch nicht Gegenstand theoretischer Untersuchungen. Eine zukünftige geeignete theoretische Beschreibung von derartigen Effekten muss daher über die Anwendung von Bandstrukturechnungen und Halbleiterblochgleichungen hinausgehen. Ein sinnvoller Weg wäre hier eine Erweiterung mit einer Transfermatrixmethode, die auch die Reflexionen mit einschließt. Erste vorläufige Ergebnisse solcher Rechnungen zeigen, dass das DTS-Signal im Brewsterwinkel im Wesentlichen dem differentiellen Absorptionsspektrum entspricht [Sch06]. Sollte sich dies bestätigen, würde das sehr starke Signal bei im senkrechten Einfall zu einem beträchtlichen Teil auf einer Unterdrückung der Reflexion beruhen. Dieses könnte künftig für nichtlineare optische Bauteile wie optische Gatter ausgenutzt werden, um die Responsivität zu erhöhen.

7 Dynamik ungeordneter III-V-Nitride

Wie bereits in Kapitel 3 beschrieben, sind die Materialsysteme Ga(NAs) und (GaIn)(NAs) in den vergangenen Jahren zu einem Brennpunkt der Forschung auf dem Gebiet der Halbleiterphysik avanciert. Neben einer Reihe von Untersuchungen, die sich mit den Eigenschaften dieser Nitride im Gleichgewichtszustand beschäftigen, sind auch Experimente zu den transienten Eigenschaften durchgeführt worden. Diese wurden vorzugsweise mittels der zeitaufgelösten Photolumineszenz (TRPL¹) durchgeführt, welche das Abklingverhalten der Lumineszenz einer Probe untersucht [Han05a]. Nachteilig bei diesem experimentellen Verfahren ist jedoch, dass sie auf das Vorhandensein einer für das Detektionssystem ausreichenden Photolumineszenz angewiesen sind. TRPL-Experimente werden daher vorzugsweise an Heterostrukturen durchgeführt, deren Wachstums- und gegebenenfalls Nachbehandlungsparameter besonders für eine gute Lichtausbeute optimiert sind. Als Folge davon weisen derartige Proben normalerweise sehr lange Lebensdauern auf, die mehrere hundert Pikosekunden bis einige Nanosekunden betragen können [Han05b]. Bei niedrigen Temperaturen gewachsene verdünnte Nitride mit kurzer Ladungsträgerlebenszeit ohne Nachbehandlung werden jedoch kaum untersucht.

An dieser Stelle sollen daher die Lebensdauern von verschiedenen Heterostrukturen aus verdünnten Nitriden untersucht werden, die nicht im Hinblick auf eine möglichst hohe Lumineszenzeffizienz gewachsen wurden. Damit stehen sie in einem direkten Gegensatz zu den durch Wachstumsparameter und Nachbehandlung als Laserstrukturen optimierten (GaIn)(NAs)-Proben aus Kapitel 4. Um eine möglichst gute Vergleichbarkeit der Proben zu gewährleisten, wurde eine Serie von Ga(NAs) und (GaIn)(NAs)-Proben untersucht, die mittels der MBE unter ähnlichen Bedingungen hergestellt wurden. Das Hauptaugenmerk liegt dabei auf einem Vergleich der Materialsysteme Ga(NAs) und (GaIn)(NAs). Die zu untersuchende Frage ist dabei, inwiefern sich der zusätzliche Einbau von Indium in das Materialsystem Ga(NAs) auswirkt. Hergestellt wurden diese im Fraunhofer Institut für Angewandte Festkörperphysik in Freiburg in der Arbeitsgruppe von

¹engl. für *Time-Resolved Photoluminescence*.

Dr. Klaus Köhler. Es handelt sich jeweils um etwa 10 nm dicke Quantenfilme, die durch GaAs-Barrieren gleicher Breite getrennt sind. Die Proben wurden mittels der Molekularstrahlepitaxie hergestellt und liegen *as grown* vor, das heißt ohne im Anschluss an das Wachstum getempert worden zu sein. Sämtliche Proben wurden bei Temperaturen um 630 C° gewachsen und die Indium- beziehungsweise Stickstoffgehalte über Wachstumsraten und Elementflüsse geregelt [Gep02].

Diese Untersuchungen sind nicht nur von einem Grundlagenstandpunkt aus interessant, denn lange Lebensdauern und gute PL-Effizienz sind nicht für alle Anwendungen wünschenswert. So werden seit einiger Zeit verdünnte Nitride auch für sättigbare Absorberspiegel im Wellenlängenbereich von 1,3 μm bis 1,5 μm diskutiert und umgesetzt [Okh03, Jou03, Sun04, Liv04, Sch05c, Spu05, Gra05, Lin05, McW05]. Die hier gewonnenen Ergebnisse können Hinweise geben, wie derartige Absorbermaterialien in ihrer Komposition zu optimieren sind.

7.1 Ga(NAs)

Zunächst wurde eine Serie von drei Ga(NAs)-Proben mit zunehmendem Stickstoffgehalt zwischen 1,1 % und 3,5 % untersucht. Die Namen und wichtigsten Parameter dieser Proben können aus Tabelle 7.1 entnommen werden. Wie auch bei den transienten Verstärkungsmessungen in Kapitel 4 wurden auch hier die Messungen durch das Substrat hindurch vorgenommen. Die ursprünglich rauen Substrate wurden dazu poliert, um unerwünschte Streuprozesse zu vermeiden. Die linearen Absorptionsspektren sind in Abbildung 7.1 dargestellt. Die Absorptionskanten von etwa 1,25 eV (I3257), 1,1 eV (I3258) und 1,05 eV (I3259) sind deutlich erkennbar, ebenso wie die quantenfilmtypische, stufenförmige Struktur des Spektrums. Mit von 1,1 % auf 2,9 % zunehmendem Stickstoffgehalt ist eine unordnungsinduzierte Verbreiterung festzustellen, so dass die Stufenstruktur bei den hochprozentigen Proben ausgewaschen ist. Bei der Erhöhung auf 3,5 % hingegen ist nur noch eine Verschiebung

Bezeichnung	QW-Dicke (nm)	Barrieren-Dicke (nm)	[N] (%)	E_G (eV)
I3257	$9,5 \pm 2$	$9,5 \pm 2$	1,1	1,25
I3258	$9,5 \pm 2$	$9,5 \pm 2$	2,9	1,1
I3259	$9,5 \pm 2$	$9,5 \pm 2$	3,5	1,05

Tabelle 7.1: *Strukturparameter der untersuchten der Ga(NAs)-Proben. Dicken und Stickstoffkonzentrationen sind mittels Röntgenbeugungs-Messungen bestimmt worden.*

der Bandkante um knapp 50 meV zu verzeichnen. Die Abnahme der Probenqualität bei höheren Stickstoffgehalten äußert sich zudem darin, dass nur bei der 1,1 %igen Probe I3257 eine Resonanz auf Grund von Coulomb-Wechselwirkungseffekten festzustellen ist.

Die Messung der differentiellen Absorption dieser Probenserie wurde bei Raumtemperatur mittels einer Anregung bei einer Wellenlänge von 915 nm durchgeführt, wobei der Anregestrahle auf einen etwa 300 μm großen Fleck fokussiert wird. Die Anregungsleistung beträgt je nach Probe zwischen 0,18 mW und 4,5 mW. Gemäß der Formel 4.1 ergibt sich aus der Fokusgröße sowie der Wellenlänge und Repetitionsrate damit eine Anregungsdichte von etwa $3,3 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 und Impuls für 1 mW ohne Berücksichtigung von Reflexionsverlusten an der Oberfläche. Die Proben wurden zudem bezüglich des Abfragestrahls im Brewsterwinkel justiert. Bei den Proben I3258 und I3259 ist der Stickstoffgehalt auf 2,9 % bzw 3,5 % erhöht, was zu einer Rotverschiebung der Bandkante führt (siehe Abbildung 7.1). Dies führt dazu, dass bei einer Anregung bei einer Wellenlänge von 915 nm im Gegensatz zur Probe I3257 nicht nur der N=1-Zustand angeregt wird sondern auch der N=2-Zustand. Daher ist der lineare Absorptionskoeffizient hier um etwa den Faktor 2 größer, wie es bei der stufenförmigen Zustandsdichte einer Quantenfilmstruktur auch zu erwarten ist. Um eine mit der Probe I3257 vergleichbare Ausgangsladungsträgerdichte zu erzielen, wurde daher in den Experimenten die Anregungsleistung mittels geeigneter reflektierender Filter in etwa halbiert.

Das differentielle Absorptionsspektrum der Probe I3257 bei einer Anregungsleistung von 4,5 mW ist in Abbildung 7.2 gezeigt. Klar zu sehen ist nicht nur die deutliche Signatur auf Grund eines Ausbleichens des Grundzustandes, sondern auch ein weiteres Signal, welches dem ersten angeregten Zustand zugeordnet werden kann. Trotz der hohen Anregungsdichten ist bei dieser Probe keine Inversion zu beobachten. Verrechnet man das lineare Spektrum mit dem differentiellen wie in Abbildung 7.2 geschehen, so ist kein positiver Wert für die Verstärkung zu erkennen. Stattdessen kommt es zu einer stark verminderten Absorption über einen breiten Spektralbereich. Eine weitere Erhöhung der Anregungsleistung, um etwa in den Bereich optischer Verstärkung zu gelangen, ist jedoch nicht sinnvoll, da bei diesen Anregungsdichten bereits deutliche Effekte des Substrats wie PA und ein Schieben der Bandkante zu Tage treten und so eine Interpretation der Spektren deutlich erschwert wird. In den Spektren in der Abbildungen 7.2 wurde diese herauskorrigiert durch Abzug der PA bei langen Zeitverzögerungen. Auf Grund der sehr langsamen Dynamik der PA ist dieses gerechtfertigt.

Der Zerfall der Besetzung des Grundzustand erfolgt mit einer charakteristischen Zeitkonstante von 125 ps, wie aus Abbildung 7.3 zu entnehmen ist. Beim N=2-Zustand beschleunigt sich dies auf etwa 30 ps, da zusätzlich Ladungsträger noch zu

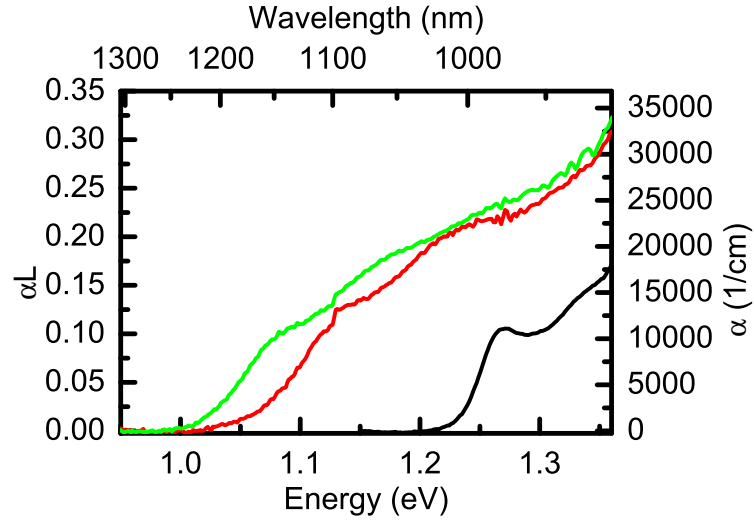


Abbildung 7.1: *Lineare Absorptionsspektren der Ga(NAs)-Proben I3257, I3258 und I3259 bei Raumtemperatur. Es zeigt sich klares Schieben der Absorptionskante zu niedrigeren Energien mit steigendem Stickstoffgehalt.*

niedrigeren k -Werten relaxieren können. Eine Abhängigkeit der Zerfallszeit von der Anregungsdichte ist nicht zu beobachten. Die Zunahme parasitärer Substrateffekte bei hohen Dichten legt allerdings nahe, die Abfallszeiten des differentiellen Signals bei moderaten Dichten zu bestimmen. Diese hier ermittelten Werte liegen deutlich niedriger als jene, die in Kapitel 4 gefunden wurden.

Eine sukzessive Erhöhung des Stickstoffgehalts wirkt sich nun gleichermaßen auf die spektrale Lage als auch die Dynamik des Populationszerfalls aus. So liegt das Maximum des dem $N=1$ -Zustand zugeordneten Signals bei 2,9 % Stickstoffanteil (Probe I3258) bei 1,117 eV. Zudem ist das differentielle Signal bei vergleichbarer Anregungsdichte in der maximalen Stärke kleiner aber spektral breiter als jenes der Probe I3257, was durch eine zunehmende inhomogene Verbreiterung der optischen Übergänge hervorgerufen wird. Zusätzlich kommt es auch zu einer drastischen Reduktion der Lebensdauer der Ladungsträger. So sinkt bei einer Erhöhung der Stickstoffkonzentration von 1,1 % bei der Probe I3257 auf 2,9 % bei der Probe I3258 die charakteristische Zeitskala τ um eine volle Größenordnung von 125 ps auf etwa 13 ps für den $N=1$ -Zustand. Beim höheren $N=2$ -Zustand ist diese Reduktion der Lebensdauer weniger stark ausgeprägt und sinkt auf etwa 7 ps. Eine weitere Erhöhung des Stickstoffgehalts auf 3,5 % bewirkt ein nochmaliges Schieben der Absorptionskante um etwa 50 meV zu niedrigeren Energien. Verglichen mit der Probe I3258 bleibt jedoch spektrale Form und die Stärke des Signals weitestgehend

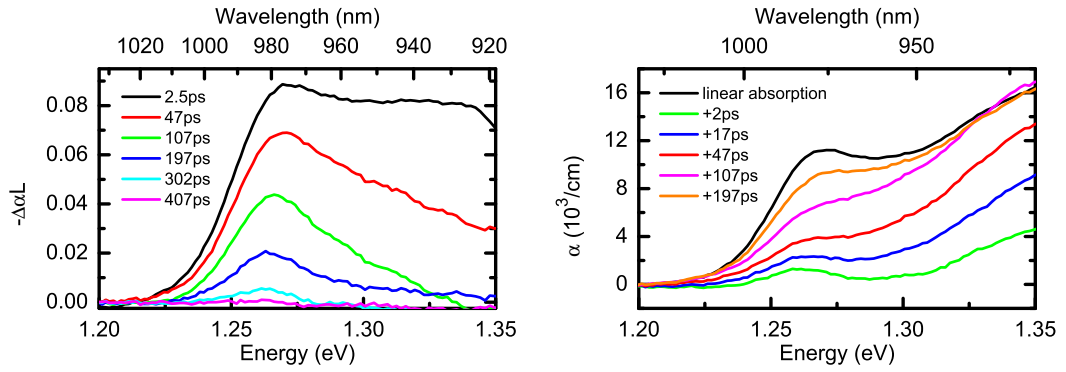


Abbildung 7.2: Differenzielle (links) und absolute (rechts) Absorptionsspektren der Probe I3257 (Stickstoffgehalt 1,1 %) bei einer Anregungsdichte von $1,5 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.

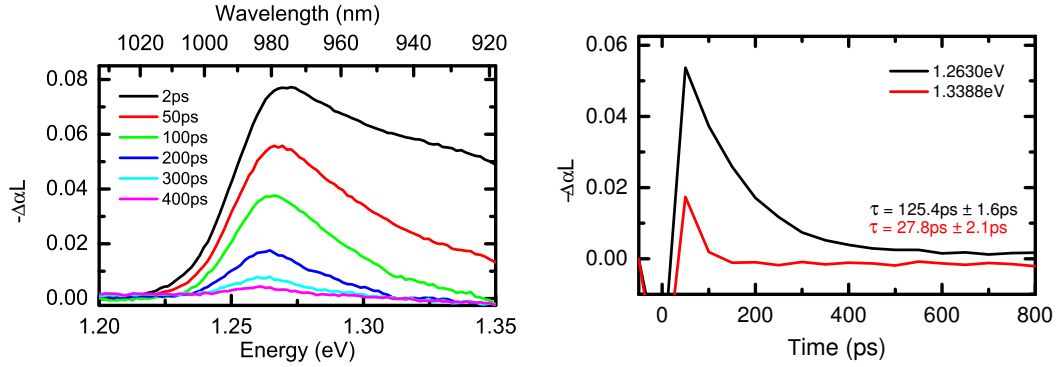


Abbildung 7.3: Differenzielle Absorptionsspektren und die zugehörigen Transienten der Probe I3257 bei einer Anregungsdichte von $4,4 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.

gleich. Die Zerfallszeit nimmt dabei auf rund 10 ps ab.

Auf größeren Zeitkalen lässt sich der Zerfall des differentiellen Signals bei allen Proben unabhängig vom Stickstoffgehalt gut über einen einfachenexponentiellen Zerfall beschreiben. Eine derartige Charakteristik des Zerfalls deutet darauf hin, dass der dominante Zerfallskanal der Ladungsträgerpopulation über eine nichtstrahlende monomolekulare Rekombination an Störstellen und Gitterdefekten stattfindet. Dieses Interpretation wird dadurch gestützt, dass die Lumineszenzeffizienz dieser Proben verglichen mit den optimierten Laserstrukturen aus Kapitel 4 relativ gering ist. Die Rate dieser Form der Rekombination, und damit die inverse Zeitkonstante, ist in etwa proportional zur Dichte der Defekte [Bha]. Eine Erhöhung des Stickstoffanteils führt dementsprechend zu einem starken Anstieg der Defektdichte im Wachstum dieser Ga(NAs)-Schichten. Gemäß [McG05] kommt es beim MBE-Wachstum von Ga(NAs)-Schichten mit hohem N-gehalt und relativ hohen

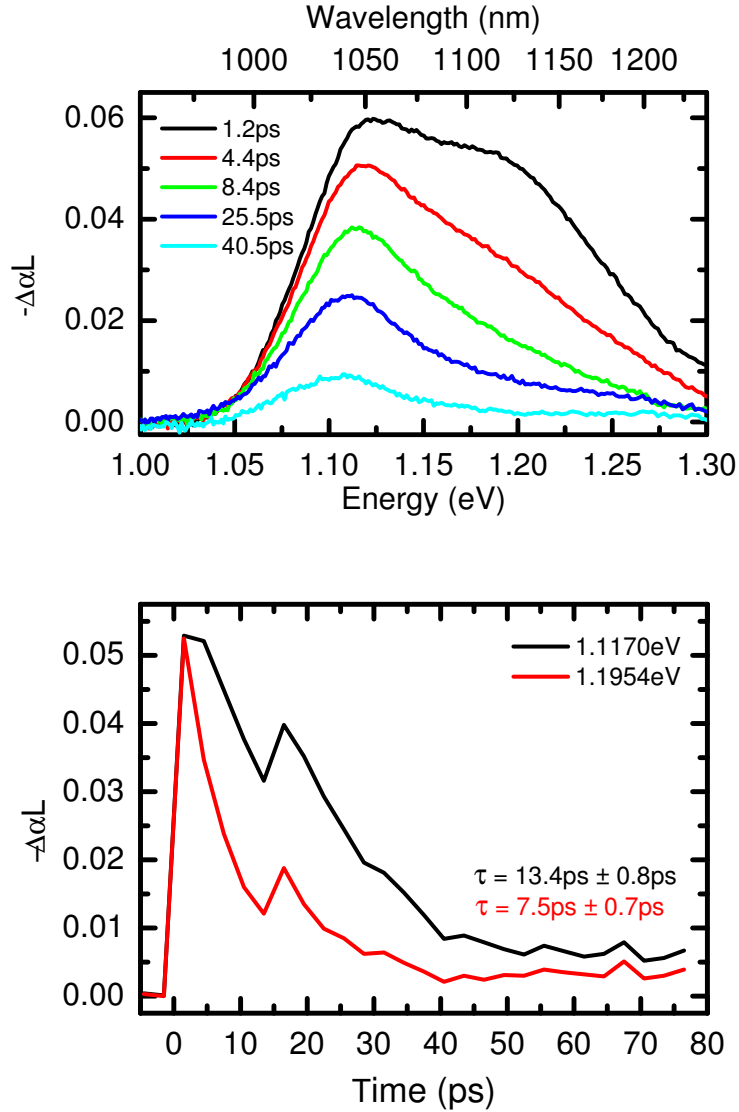


Abbildung 7.4: Differenzielle Absorptionsspektren und -transienten der Probe I3258 bei einer Anregungsdichte von $8 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.

Temperaturen ($> 500^\circ\text{C}$, vergl. [Kon02]) zu einer rauerer Grenzfläche zwischen den Quantenfilmen und den Barrieren. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass die hier beobachtete Abnahme der Ladungsträgerlebensdauern mit ansteigendem N-Gehalt teilweise auch durch eine stickstoffinduzierte verstärkte Grenzflächenrekombination hervorgerufen wird. Gestützt wird diese Interpretation durch XRD-Spektren, die eine abnehmende Kristallqualität mit zunehmendem Stickstoffanteil aufzeigen.

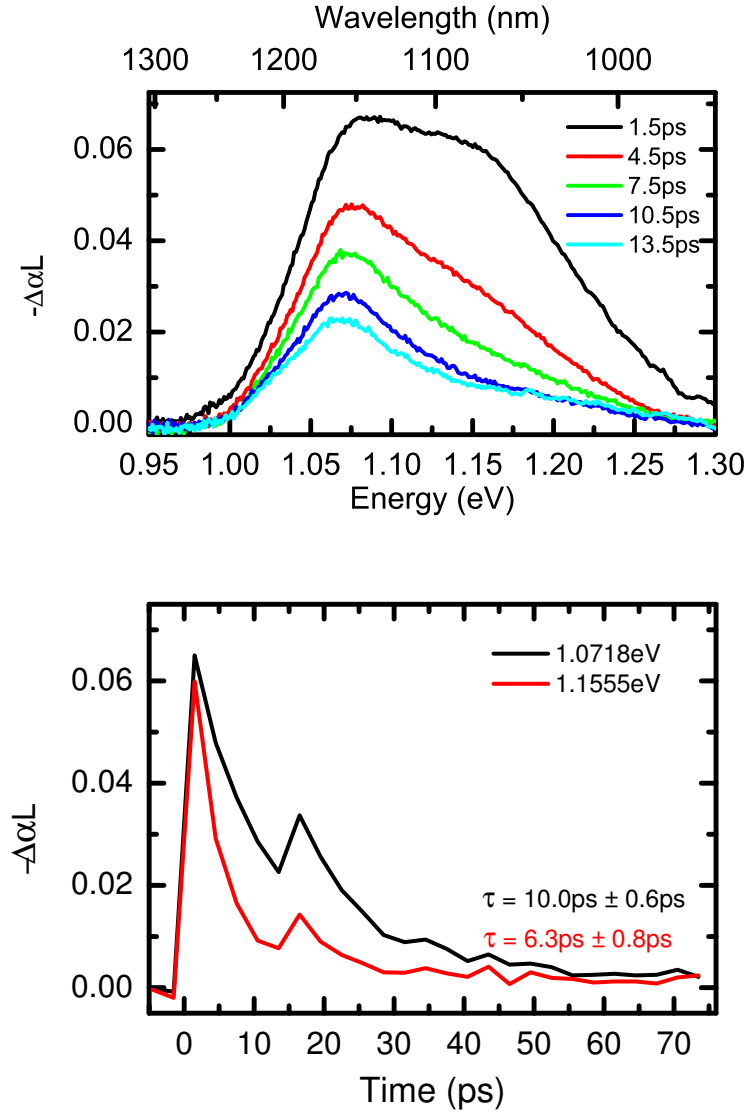


Abbildung 7.5: Differenzielle Absorptionsspektren und Transienten der Probe I3259 bei einer Anregungsdichte von $8 \cdot 10^{15}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.

Die Transienten der Proben I3258 und I3259 zeigen eine Besonderheit, die in dieser Form bei der Probe I3257 nicht auftritt. Betrachtet man nur kurze Verzögerungszeiten nach der Anregung, so zeigt sich eine deutliche sprunghafte Erholung des Signals 16 ps nach der Anregung, die bei der 1,1 % Probe nicht zu beobachten ist. Der genaue Ursprung dieses Signals ist nicht abschließend geklärt. Es kann sich hierbei nicht um ein erneutes Pumpen der Quantenfilme durch eine Rückreflexion von der Probenrückseite handeln. Nach dem Polieren hat die Probe noch eine verbleibende Dicke von 300 bis 400 μm , so dass bei einem Brechungsindex von

etwa 3,5 ein Lichtimpuls nur etwa 7 bis 9 ps braucht, um die Probe zweimal zu durchlaufen. Dieses entspricht nur etwa der halben Zeitdauer bis zum Auftreten des Echos. Eine Dichteoszillation ist ebenfalls nicht wahrscheinlich, da die diese von der Anregungsdichte abhängig sein sollte [Bha], was aber nicht zu beobachten ist. Ebenfalls unwahrscheinlich ist ein doppelter Anregeimpuls. Ein solcher könnte auftreten, sofern an einer Optik im Strahlengang eine Rück- oder Doppelreflexion auftritt, beispielsweise ein doppelter Rückreflex an der Fokussierlinse oder einem Filter im Strahlengang. Allerdings dürfte dieser auf Grund der großen Signalstärke nur wenig schwächer sein als der erste Anregeimpuls, so dass er wie auch der erste Impuls in Form einer induzierten TPA zu beobachten sein müsste. Dies ist aber nicht der Fall. Zu beobachten ist dieser Echoeffekt nicht nur bei der Probe I3258, sondern tritt auch bei der Probe I3259 auf, wie in Abbildung 7.5 zu erkennen. Hier ist die Ausprägung sogar noch deutlicher. Der Umstand, dass dieser Effekt anscheinend verstärkt bei Proben mit relativ stark verbreiterten Übergängen und kurzen Lebensdauern der Population auftritt, könnte Anlass zu Vermutung geben, dass es sich hierbei möglicherweise auch um einen unordnungsinduzierten Effekt handeln könnte. Die genauen Mechanismen, die zu einem derartigen Echoeffekt führen könnten, sind jedoch unklar.

7.2 (GaIn)(NAs)

Zusätzlich zu den im vorigen Abschnitt vorgestellten Ga(NAs)-Proben wurde eine Serie von (GaIn)(NAs)-Strukturen untersucht, die unter vergleichbaren Bedingungen gewachsen wurden. Die Verhältnisse der Indium- und Stickstoffkonzentrationen wurden so gewählt, dass die Strukturen gitterangepasst zum GaAs-Substrat sind und somit keine makroskopische Verspannung aufweisen. Dieses wird zusätzlich durch XRD-Spektren² dieser Proben bestätigt. Diese Proben erlauben auf Grund ähnlicher Wachstumsparameter einen Vergleich mit den indiumfreien Proben im Hinblick auf den Einfluss des Indiumeinbaus in Ga(NAs) auf die Ladungsträgerdynamik. Das Hauptaugenmerk liegt auf drei Proben mit Stickstoffgehalten zwischen 1 % und 3 %, deren Strukturparameter aus Tabelle 7.2 ersichtlich sind.

In linearer und differentieller Absorption ist gemäß den in Kapitel 3 angesprochenen Mechanismen bei ähnlichem Stickstoffgehalt eine deutliche Rotverschiebung der Bandlücke mit zunehmendem Indiumgehalt zu beobachten. Ebenfalls kommt es weiterhin zu einer Verbreiterung der Übergänge, welche durch die zunehmende Unordnung auf Grund von Legierungsfluktuationen und lokalisierten Zuständen bedingt ist. In den linearen Absorptionsspektren in Abbildung 7.6 können daher

²Röntgenbeugung, engl. für *X-Ray Diffraction*.

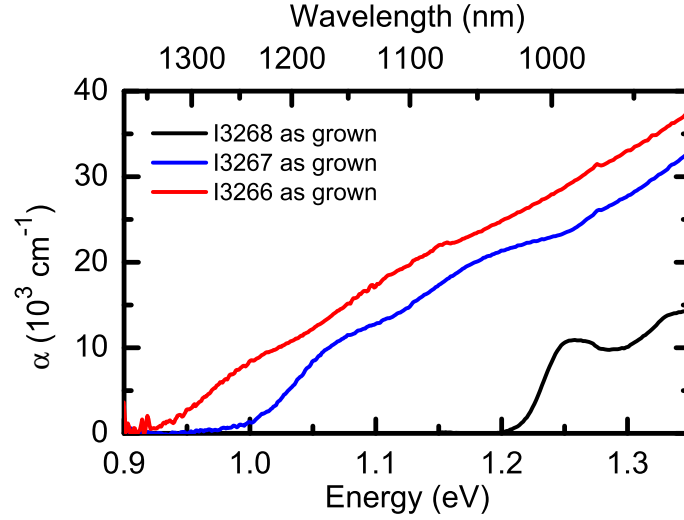


Abbildung 7.6: *Lineare Absorptionsspektren der gitterangepassten (GaIn)(NAs)-Proben I3266, I3267 und I3268 bei Raumtemperatur.*

gerade bei den nichtausgeheizten Proben mit hohem Stickstoffgehalt die individuellen Übergänge nur sehr undeutlich identifiziert werden. Auf Grund der fehlenden bzw. verschwindend geringen Verspannung dieser Quantenfilmstrukturen sind die fundamentalen Bandkanten einem kombinierten LB1-SL1 / LB1-LL1-Übergang zuzuordnen, da diese am Γ -Punkt der Brillouin-Zone energetisch entartet sind. Bandstrukturrechnungen zeigen, dass die zusätzlichen Signaturen der Probe I3267 dem LB2-SL2-Übergang zuzuordnen sind. Bei der Probe I3266 tragen zusätzlich

Bezeichnung	QW-Dicke (nm)	[In] (%)	[N] (%)	E_G (eV)
I3266 <i>as grown</i> getempert	$9,5 \pm 2$	3	8	0,96 1,02
I3267 <i>as grown</i> getempert	$9,5 \pm 2$	2	6	1,04 1,09
I3268 <i>as grown</i> getempert	$9,5 \pm 2$	1	3	1,23 1,25

Tabelle 7.2: *Strukturparameter der gitterangepassten (GaIn)(NAs)-Proben. Dicken und Stickstoffkonzentrationen sind mittels XRD-Messungen bestimmt worden. Bandlückenenergien E_G sind aus linearen Absorptionsspektren ermittelt.*

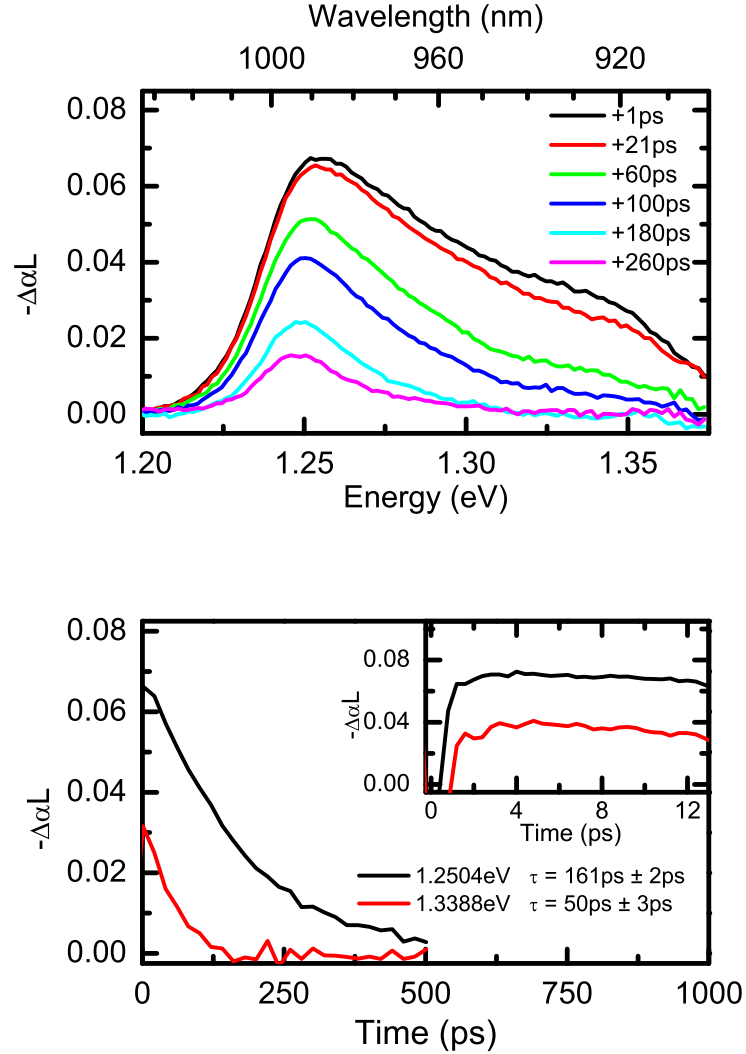


Abbildung 7.7: Differenzielle Absorptionsspektren und Transienten einer gitterangepassten (GaIn)(NAs)-Probe mit 1% Stickstoff und 3% Indium. Die Anregungsdichte beträgt $2 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.

auch noch LB2-LL2 und LB3-SL3-Übergänge bei.

Differenzielle Absorptionsspektren der Probe I3268 bei einer Anregungsdichte von $2 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls und einer Anregungswellenlänge von 915 nm zeigen ein Ausbleichen der Absorption mit zwei deutlichen Übergängen bei Energien um 1,250 eV und 1,35 eV. Letzterer ist dem Ausbleichen der Absorption im jeweils zweiten Leitungs- und Schwerlochband zuzuordnen. Verglichen mit der Probe I3257, die eine ähnliche Stickstoffkonzentration aufweist, aber kein Indium enthält, entspricht dieses einer Absenkung der Bandlücke um etwa 13 meV. Das Maximum

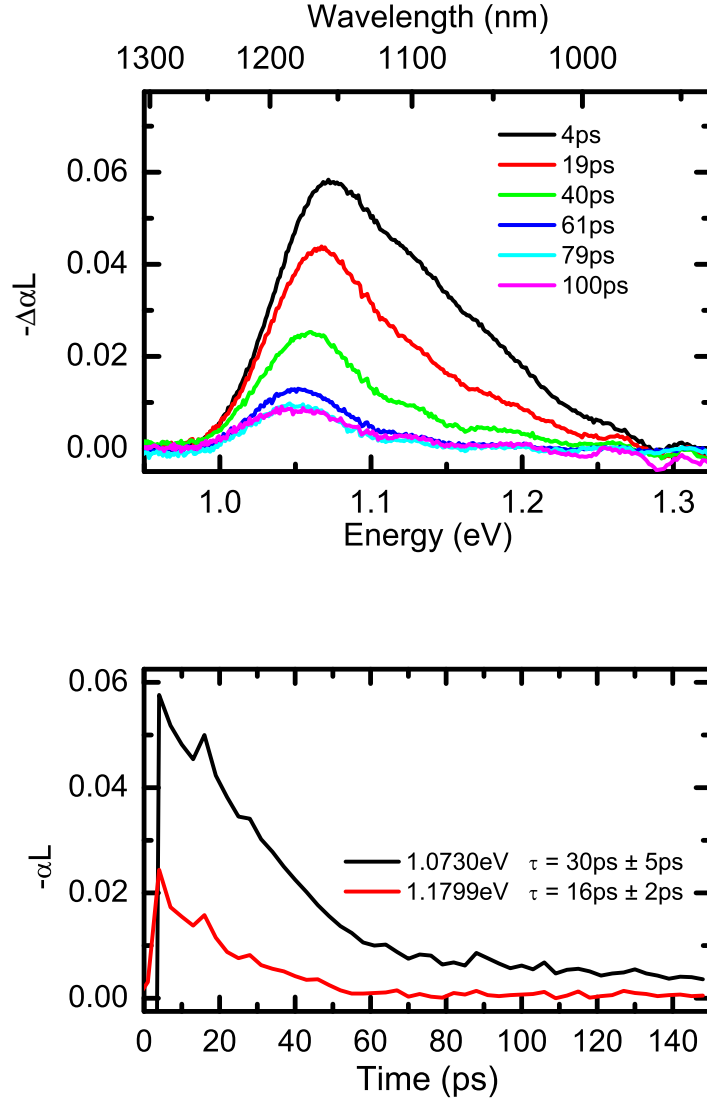


Abbildung 7.8: Differenzielle Absorptionsspektren einer gitterangepassten (GaIn)(NAs)-Probe mit 2% Stickstoff und 6% Indium. Die Anregungsdichte beträgt $2 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.

des Signals am Grundzustand schiebt bei geringeren Anregungsdichten geringfügig zu 1,246 eV auf Grund von Bandfülleffekten.

Ähnlich wie zuvor bereits bei den Ga(NAs)-Proben ist die Ausbildung des differentiellen Signals im Rahmen der Zeitaufösung instantan, das heißt schneller als etwa 500 fs. Insbesondere ist kein Einfang von Ladungsträgern in durch Fluktuationen der lokalen Stickstoff-Indium-Umgebungen hervorgerufene lokalisierte Zustände zu

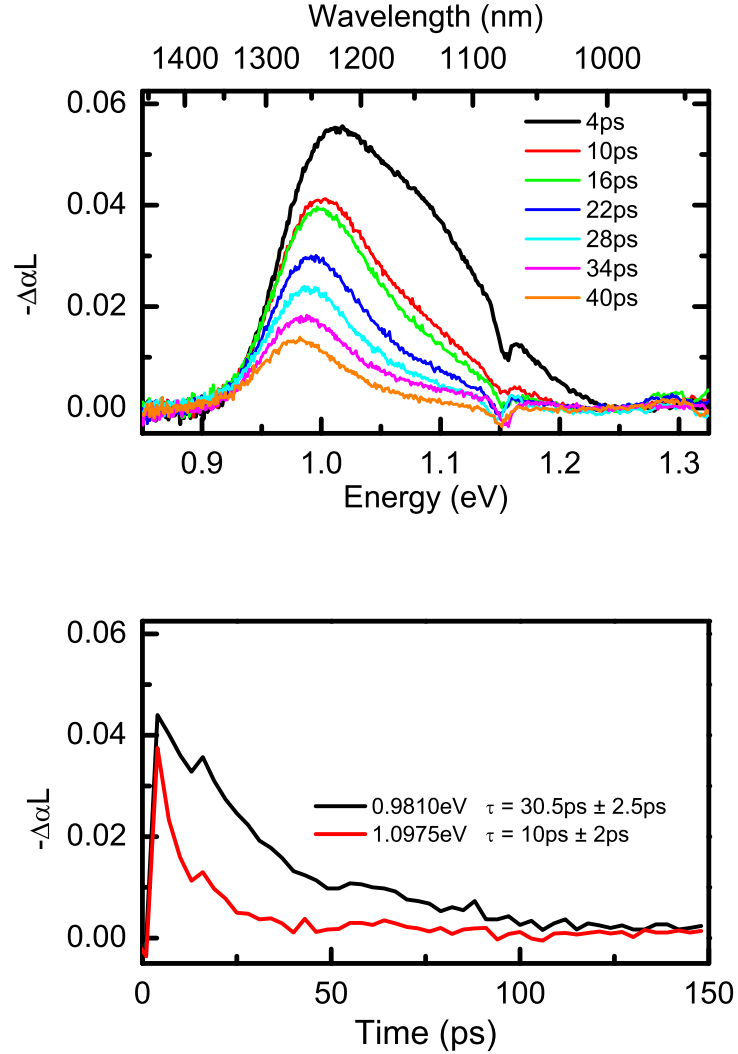


Abbildung 7.9: *Differenzielle Absorptionsspektren einer gitterangepassten (GaIn)(NAs)-Probe mit 3 % Stickstoff und 8 % Indium.*

beobachten. Dementsprechend betragen die Einfangszeiten dieser Zustände weniger als 500 fs, die Zeitauflösung in diesem Experiment. Nach diesem schnellen Ausbilden des differentiellen Signals kommt es dann zu einem exponentiellen Zerfall der Dichte. Am Grundzustand erfolgt dieser erst mit einer leichten Verzögerung von etwa 20 ps. Der Verlust freier Ladungsträger durch Rekombination wird auf diesen Zeitskalen von Nachfüllprozessen und einem Abkühlen der anfänglich heißen Ladungsträgerverteilung teilweise kompensiert. Die charakteristischen Zerfallszeiten betragen 161 ps am Grundzustand und 50 ps am LB2-SL2-Übergang. Dieses ist langsamer als die Zerfallszeit der Besetzung der indiumfreien Vergleichsprobe. Bei

dieser betragen die charakteristischen Zeitskalen 125 ps beziehungsweise 25 ps.

Geht man nun zu Proben mit höheren Stickstoff- und Indiumgehalten über, so ist, wie auch bei den Ga(NAs)-Proben im vorigen Abschnitt, eine deutliche Rotverschiebung zu beobachten, die allerdings durch die zunehmenden Indiumgehalte dieser Proben stärker ausfällt. Angeregt mit $2 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls bei einer Wellenlänge von 1075 nm liegt das Signal des Grundzustands für 2 % Stickstoff und 6 % Indium bei einer Energie von 1,072 eV. Für lange Zeiten bzw. niedrige anfängliche Anregungsdichten schiebt das Maximum stark zu 1,041 eV. Ursache ist die zunehmende Ausprägung lokalisierter Zustände und niederenergetische Bandkantenausläufer, die in einer weniger scharf definierten Bandkante resultieren, wie auch aus den linearen Absorptionsspektren zu ersehen ist (7.6). Die Lebensdauer der Population nimmt auf $30 \text{ ps} \pm 5 \text{ ps}$ am Grundzustand und 16 ps am LB2-SL2-Übergang ab. Bei 3 % Stickstoff / 8 % Indium verringert sich die Bandlücke weiter. Das differenzielle Signal wandert zu 0,982 eV bei geringen Anregungsdichten. Die Abfallzeit des Signals am Grundzustand am Grundzustand ändert sich aber nicht weiter. Die Zeitkonstante beträgt 30,5 ps. Dieser Wert ist in etwa doppelt so hoch wie die Lebenszeit der Probe I3258, die einen vergleichbaren Stickstoffgehalt aufweist. Dieses folgt dem Verhalten der Proben mit 1 % Stickstoff, dass die Lebenszeit durch den Indiumeinbau größer wird. Ursache dürfte insbesondere die Reduktion der Grenzflächenrekombination sein. So zeigen XRD-Spektren eine höhere Materialqualität, als es insbesondere bei der Probe I3259 der Fall ist, was die vergleichsweise weniger ausgeprägte Lebensdauerreduktion erklärt.

7.3 Getempertes (GaIn)(NAs)

Beim Materialsystem (GaIn)(NAs) führt man, wie in Kapitel 3.4 bereits beschrieben, zur Verbesserung der Photolumineszenzeffizienz häufig einen Ausheizschritt durch, um die Zahl nichtstrahlender Rekombinationszentren zu verringern. Aber auch wenn man nicht an einer Verbesserung der Lumineszenzeigenschaften interessiert ist, kann ein solches Ausheizen der Proben Sinn ergeben. Die Blauverschiebung der Bandkante, die häufig beim Ausheizen auftritt, kann genutzt werden, um die spektrale Lage der Absorptionskante nach dem Wachstum fein einzustellen. Allerdings führt ein solches Verfahren neben der Änderung der spektralen Lage der Übergänge auch zu einer anderen Dynamik.

Um dieses näher zu untersuchen, wurden die (GaIn)(NAs)-Proben des vorigen Abschnitts auch in ausgeheizter Form untersucht. Das Tempern erfolgte dabei bei einer Temperatur von 850 °C für eine Dauer von 120 s. die hier verwendeten Temperaturen sind relativ hoch und erlauben gleichermaßen Indium- und Stickstoffinter-

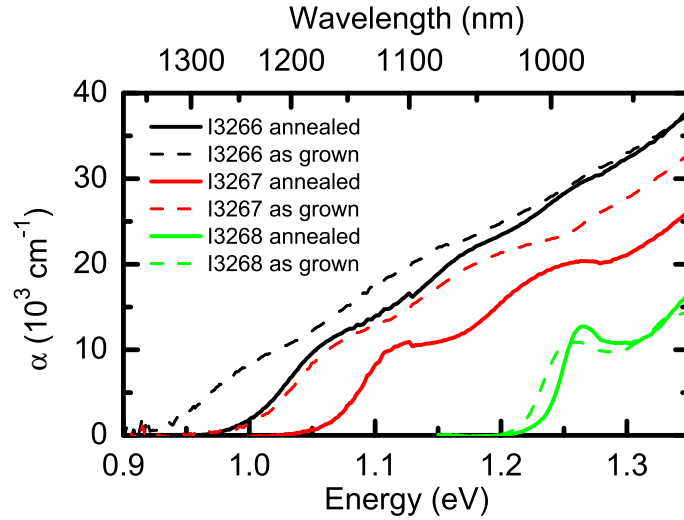


Abbildung 7.10: *Lineare Absorptionsspektren der gitterangepassten (GaIn)(NAs)-Proben I3266, I3267 und I3268 bei Raumtemperatur. Gestrichelt eingezeichnet die unausgeheizten Proben zum Vergleich.*

diffusion [Oye05]. Erwartungsgemäß kommt es in den linearen Absorptionsspektren zu einer Blauverschiebung der Bandkante, wie in Abbildung 7.10 zu erkennen. Die Stärke der Verschiebung nimmt dabei mit zunehmenden Stickstoff- und Indiumgehalten zu. Beträgt sie bei der Probe I3268 gerade einmal 14 meV, so steigt sie bei den Proben I3267 und I3266 auf jeweils etwa 55 meV. Die Blauverschiebung geht einher mit einer Abnahme der Verbreiterung der Absorptionskante. Dies ist besonders ausgeprägt bei der Probe I3266 mit ihrem relativ hohen Stickstoffanteil von 3 %.

Diese Blauverschiebung tritt auch in den differentiellen Spektren zutage. Betrachtet man zunächst die ausgeheizte Probe I3268 mit ihren geringen Stickstoff- und Indiumgehalten, so unterscheidet sich das differentielle Signal bei hohen Anregungsdichten in seiner spektralen Form nur wenig von dem der nichtgetemperten Probe. So schiebt das Maximum der differentiellen Absorption durch das Ausheizen von 1,253 auf 1,265 eV und die etwas stärkere Ausbildung von Coulombeffekten, die in den linearen Absorptionsspektren hervortritt, bewirkt eine leichte Zunahme des maximalen Signals von etwa 0,07 auf 0,085. Deutliche Unterschiede treten jedoch in der Zerfalldynamik zu tage. So nimmt die charakteristische Zeitkonstante, mit der die Population zerfällt, auf 290 ps zu. Dieses ist nahezu eine Verdopplung gegenüber der nichtausgeheizten Probe. Der Umstand, dass die Transiente jedoch nach wie vor über eine einfachexponentielle Abnahme beschrieben werden kann, zeigt jedoch, dass nichtstrahlende Rekombination nach wie vor der dominierende

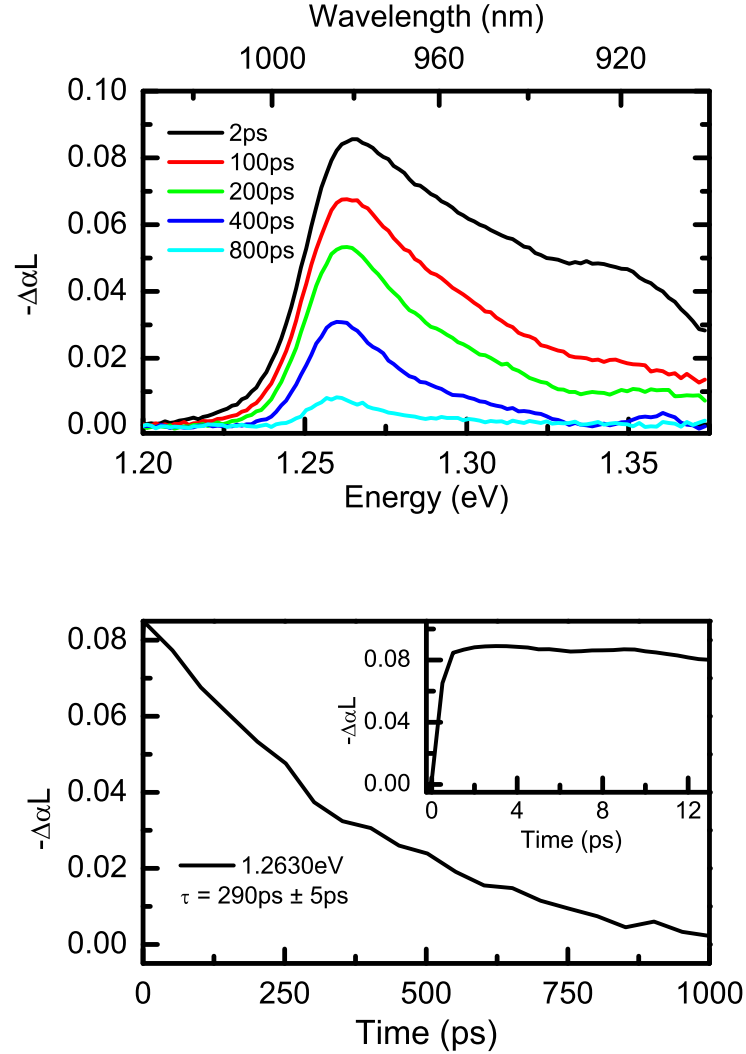


Abbildung 7.11: *Differenzielle Absorptionsspektren einer gitterangepassten (GaIn)(NAs)-Probe mit 1 % Stickstoff und 3 % Indium nach dem Ausheizen. Die Anregungsdichte beträgt $2 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.*

Rekombinationsprozess ist.

Bei höheren Stickstoffkonzentrationen verstärkt sich der Trend, dass eine Ausheizbehandlung der Proben zu einem Verlangsamen der Rekombinationsdynamik führt. Bei 2 % Stickstoff (siehe Abbildung 7.12) beträgt die Zerfallszeit 115 ps am Grund- und 65 ps am ersten angeregten Zustand. Gegenüber der nichtausgeheizten Probe ist hier die Lebensdauer damit bereits vervierfacht. Gleichzeitig vermindert sich die Verschiebung des maximalen $-\Delta\alpha L$ -Signals über den Verlauf der Tran-

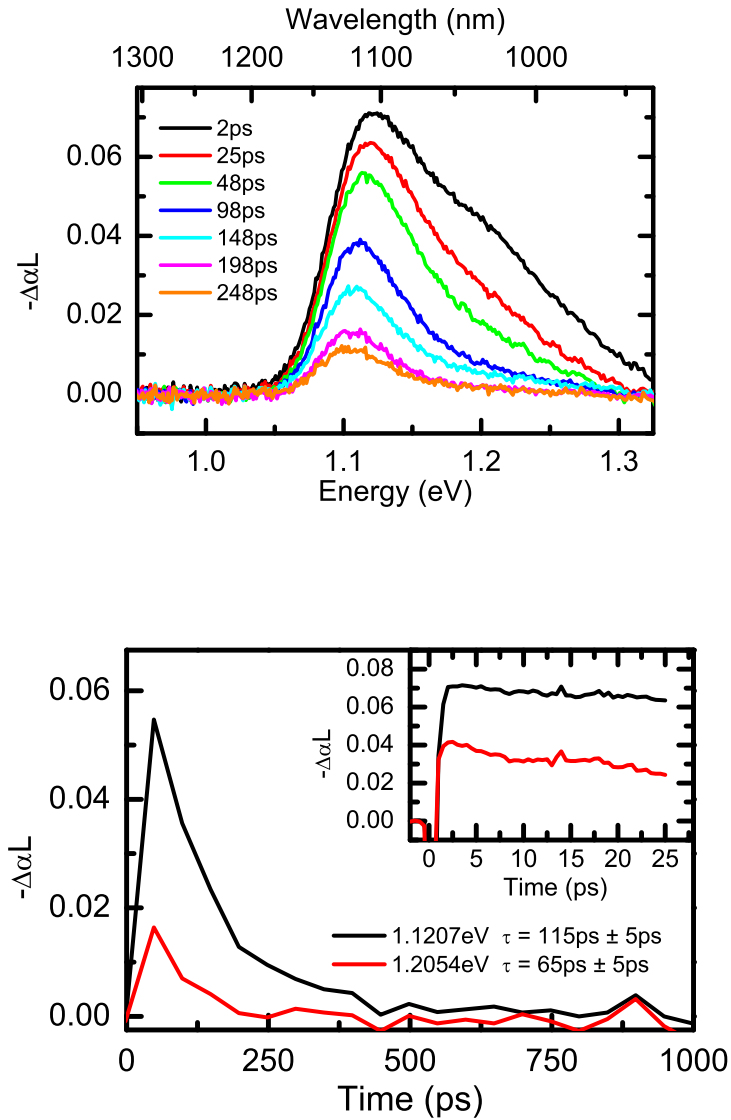


Abbildung 7.12: Differenzielle Absorptionsspektren einer gitterangepassten (GaIn)(NAs)-Probe mit 2% Stickstoff und 6% Indium nach dem Ausheizen. Die Anregungsdichte beträgt $2 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 und Impuls.

sienten. Schiebt die nichtausgeheizte Probe im Laufe der Zeit um 29 meV von anfänglich 1,073 eV zu 1,044 eV, so reduziert sich dieses nach dem Ausheizen auf eine Verschiebung von 18 meV. Hier läuft das Maximum von 1,123 eV zu 1,105 eV. Dies zeigt, dass das Ausheizen eine Verringerung der unordnungsinduzierten Ver-

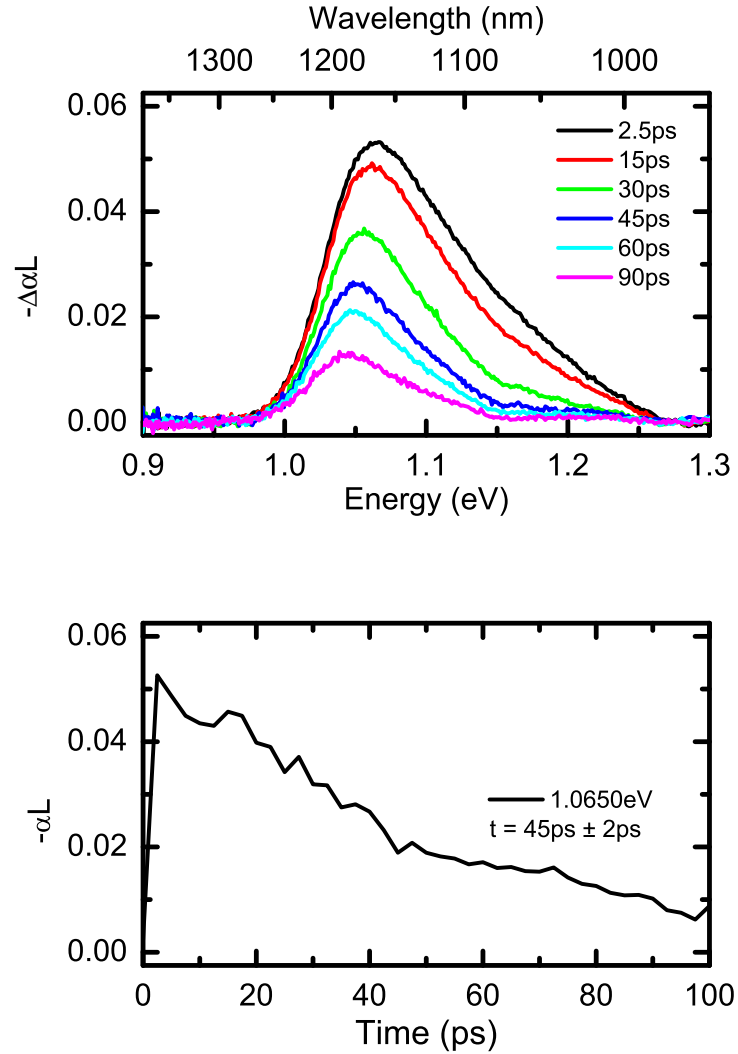


Abbildung 7.13: Differenzielle Absorptionsspektren einer gitterangepassten (GaIn)(NAs)-Probe mit 3% Stickstoff und 8% Indium nach dem Ausheizen. Die Anregungsdichte beträgt $2 \cdot 10^{16}$ Photonen pro cm^2 .

breiterung der Bandkante bewirkt und die Zahl lokalisierter Zustände vermindert wird.

Bei 3% Stickstoffgehalt ist diese fortschreitende Vergrößerung der Lebensdauer, wie sie bei kleinen bis mittelgroßen N-Gehalten festgestellt wurde, weitaus weniger ausgeprägt. So ist am Grundzustand gerade einmal eine Zunahme der Lebensdauer um 50% zu beobachten. Sie steigt von 30 ps auf 45 ps. Die hier gewählten

Probe	Abfallzeit (as grown) (ps)	Abfallzeit (annealed) (ps)
I3268	161 ± 2	290 ± 5
I3267	30 ± 5	115 ± 5
I3266	$30,5 \pm 2,5$	45 ± 5

Tabelle 7.3: *Abfallszeiten der Besetzung der gitterangepassten (GaIn)(NAs)-Proben an der fundamentalen Bandlücke.*

Ausheizparameter sind also nicht optimal geeignet, die nichtstrahlenden Rekombinationseffekte zu vermindern und Kristalldefekte auszuheilen. Dennoch kommt es zu einer Verringerung der Verbreiterung der Übergänge. So reduziert sich die Verschiebung der spektralen Position des maximalen Ausbleichens von 41 meV auf nur 22 meV. Diese Reduktion ist deutlich ausgeprägter als die bei nur 2 % Stickstoff und 6 % Indium.

7.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die Zerfallszeiten von optisch generierten Ladungsträgern in MBE-gewachsenen, nicht nachbehandelten Quantenfilmstrukturen aus Ga(NAs) und (GaIn)(NAs) mittels der transienten Absorptionsspektroskopie untersucht. Es zeigt sich, dass die Ladungsträgerpopulation in indiumfreien Heterostrukturen mit 1 % Stickstoffanteil auf einer Zeitskala von 125 ps zerfällt. Steigt der Stickstoffgehalt, so ist eine Abnahme der Lebenszeit zu beobachten. Bei 3,5 % Stickstoffgehalt sinken die Lebensdauern um eine Größenordnung auf etwa 10 ps.

Eine Zugabe von Indium, so dass an Stelle von Ga(NAs) das Materialsystem (GaIn)(NAs) entsteht, bewirkt in allen Fällen eine deutliche Steigerung der Ladungsträgerlebensdauern. Bei geringen Stickstoffgehalten ist diese mit rund 30 % relativ gering, bei Proben mit Stickstoffgehalten um 3 % ist jedoch bereits mehr als eine Verdopplung der Lebensdauern zu beobachten mit Anstiegen von unter 15 ps auf rund 30 ps. Unter vergleichbaren Anregungsbedingungen sind die beobachteten Werte der differentiellen Absorption nahe der Bandkante dabei immer von vergleichbarer Größe und liegen für Anregungsdichten von 10^{16} Photonen pro cm^2 in der Größenordnung von 6000 cm^{-1} und Impuls.

Ein Ausheizen der (GaIn)(NAs)-Heterostrukturen bei Temperaturen von 850°C für 120 s führt zu deutlichen Erhöhungen der charakteristischen Zerfallszeiten bei

allen untersuchten Proben. Die relativen Veränderungen hängen dabei stark von den Stickstoffkonzentrationen ab. Maximal wird eine Vervierfachung der Lebenszeit bei 2 % Stickstoff und 6 % Indium beobachtet, die durch das Ausheizen von 30 ps auf 115 ps ansteigt. Bei 3 % Stickstoff / 8 % Indium ist der Anstieg der Lebensdauer wesentlich geringer ausgeprägt. So steigt die charakteristische Zeitkonstante von 30 ps auf gerade einmal 45 ps an. Dieses ist umso bemerkenswerter, da die Zerfallszeiten bei diesen Proben ohne ein Ausheizen vergleichbar bei 30 ps liegen.

8 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Aufbau für die breitbandig spektral aufgelöste transiente Absorptionsspektroskopie realisiert. Dieser Aufbau erlaubt die Messung differenzieller Absorptionsspektren auf ultrakurzen Zeitskalen bis hin zum Bereich von 200 fs. Ein optischer parametrischer Verstärker ermöglicht dabei die Variation der Anregungslichtquelle von 530 nm bis 2700 nm. Der detektierbare Wellenlängenbereich reicht von 400 nm bis 1600 nm und Änderungen der Transmission kleiner als 0,5 % können aufgelöst werden.

Dieser Aufbau wurde verwendet, um die Dynamik der optischen Verstärkung auf Grund intrinsischer Verluste in (GaIn)As und zum ersten Mal auch in dem neuartigen verdünnten Nitrid (GaIn)(NAs) zu untersuchen. Es konnte gezeigt werden, dass die Zeitskalen des Abbaus der Verstärkung durch intrinsische Verluste bei Raumtemperatur in beiden Materialien vergleichbar sind. Sättigungseffekte und Nachfütterungsprozesse aus höheren Subbändern dominieren die Verstärkungsdynamik nahe der Bandkante bei hohen Anregungsdichten. In sämtlichen Experimenten verhielt sich (GaIn)(NAs) wie ein gewöhnlicher III-V-Halbleiter bezüglich seiner Verstärkungsdynamik, was belegt, dass dieses Material außer Wachstums-optimierungen keine neuartigen Konzepte zur Konzipierung effizienter Laser erfordert. Effekte auf Grund von unterschiedlichen Nächste-Nachbar-Konfigurationen des Stickstoffs auf das zeitliche Verhalten von Verstärkung bzw. Absorption waren nicht zu beobachten. Messungen bei hohen Anregungsdichten an (GaIn)(NAs) zeigen, dass optische Verstärkung auch aus höheren Subbändern beobachtet werden kann. Limitierend bei diesen Messungen zeigten sich Substrateffekte, die zu parasitären Signalbeiträgen führen und die Beobachtung des Aufbaus der optischen Verstärkung im Subpikosekunden-Bereich verhindern.

Weitere Experimente sollten auf die Untersuchung der Verstärkungsdynamik zu sehr kurzen Verzögerungszeiten abzielen. Insbesondere von Interesse sind hier Verstärkungsspektren aus Nichtgleichgewichtsverteilungen der Elektronen und Löcher. Dazu müssen jedoch die parasitären Substrateffekte deutlich verringert werden. Ein Ansatz zu diesem Ziel könnte beispielsweise eine Fixierung der Probe auf

einem Saphirsubstrat mit anschließender nasschemischer Entfernung des GaAs-Substrats sein. Nicht weniger wichtig als die Fortsetzung der Experimente ist die weitere theoretische Beschreibung der gemessenen Verstärkungsspektren. Berechnungen mittels der mikroskopischen Theorie sollten genutzt werden, um simultan sowohl die spektrale Form als auch die zeitliche Entwicklung der Verstärkung zu modellieren.

In einem zweiten Teil der Arbeit wurde untersucht, inwiefern die neuartigen Materialien Ga(NPAs) und Ga(NAs) sich dazu eignen, Halbleiterlaser auf GaP-Substraten zu realisieren. Erstmals konnte demonstriert werden, dass Mehrfachquantenfilmstrukturen dieser Materialien mit Stickstoffgehalten um 3 % und gegebenenfalls 8 % Phosphoranteil unter optischer Anregung mit ultrakurzen Lichtimpulsen Laseraktivität von tiefen Temperaturen bis einschließlich Raumtemperatur zeigen. Beide Materialsysteme zeigen vergleichbare Laserschwellen bei Temperaturen um 20 K. Eine Bestimmung der Temperaturabhängigkeit der Schwelle zeigt, dass Ga(NPAs) eine größere Temperaturstabilität aufweist mit einer charakteristischen Temperatur T_0 von 86 K in einem Temperaturbereich zwischen 20 K und Raumtemperatur. Bei Ga(NAs)-Quantenfilmen liegt T_0 mit 71 K deutlich niedriger. Messungen der modalen Verstärkung von Ga(NPAs)/GaP-Heterostrukturen bei tiefen Temperaturen wurden mittels der Methode nach B.W. Hakki und T.L. Paoli durchgeführt. Hierbei konnten modale Verstärkung von mindestens 20 cm^{-1} nachgewiesen werden. Limitierend in diesen Experimenten wirkten sich die begrenzte spektrale Auflösung des zur Verfügung stehenden Detektorsystems und die gepulste Anregung aus, die der Genauigkeit der ermittelten modalen Verstärkung Grenzen setzt. Insbesondere führte dieses dazu, dass eine Bestimmung bei Raumtemperatur nicht möglich war.

Für die Zukunft bieten sich auch für dieses Materialsystem Messungen der transienten Verstärkung an. Solche Untersuchungen könnten weitere Einblicke in die bislang weitgehend unverstandene Bandstrukturbildung dieses vielversprechenden Halbleiters geben. Hierfür sind jedoch Proben mit mehr Quantenfilmen bzw. einer größeren Gesamtdicke der Quantenfilme erforderlich, um differenzielle und lineare Absorptionsspektren mit hinreichender Signalstärke zu gewinnen. Langfristig wird es natürlich von allergrößtem Interesse sein, das Materialsystem Ga(NPAs) auch auf Silizium zu übertragen. Sollte dies gelingen, wäre das Ziel einer vollintegrierten Optoelektronik damit in greifbare Nähe gerückt.

Bei einer ersten Untersuchung der differentiellen Transmission von Braggstrukturen konnte gezeigt werden, dass in solchen Strukturen das differentielle Signal eine starke Winkelabhängigkeit aufweist. Die beobachtete hohe, spektral scharfe Modulation der Transmission im senkrechten Einfall könnte in Zukunft Anwendung in nichtlinearen optischen Bauteilen finden. Hier wird es interessant werden, diese

Effekte künftig im Detail sowohl an Bragg- als auch an Antibragg-Strukturen zu verfolgen. Eine genaue theoretische Modellierung ist dabei jedoch von höchster Wichtigkeit.

Zuletzt wurden Untersuchungen zu den Zerfallszeiten von differentiellen Absorptionssignalen in verdünnten Nitriden durchgeführt. Es konnte gezeigt werden, dass in Ga(NAs) ein zunehmender Stickstoffgehalt zu einer beträchtlichen Verkürzung der Lebensdauer führt, wobei eine Erhöhung von 1 % Stickstoffgehalt auf 3 % eine Reduktion der charakteristischen Zeitkonstante um eine volle Größenordnung von 125 ps bis hinab zu 10 ps bewirkt. In einem direkten Vergleich dazu zeigen indiumhaltige (GaIn)(NAs)-Heterostrukturen bei vergleichbaren Stickstoffanteilen generell einen merklichen Anstieg der Zerfallszeiten. Dieser Effekt tritt ausgeprägter bei Strukturen mit großen Stickstoffgehalten ($> 2\%$) auf, bei denen die Lebensdauern sich mehr als verdoppeln. Ein Ausheizen der (GaIn)(NAs)-Heterostrukturen führt neben einer Blauverschiebung der Bandkante zu einem Anstieg der Zerfallszeiten des differentiellen Signals. Im Extremfall konnte eine Vervierfachung der Abfallszeiten von 30 ps auf 115 ps bei einem Stickstoffgehalt von 2 % und 6 % Indium beobachtet werden.

A Symbol- und Abkürzungsverzeichnis

A.1 Symbole

$\alpha(\omega,)$	Absorptionskoeffizient
β	Kopplungsparameter
d_{FWHM}	Größe des Anregungsfokus
$\Delta\alpha(\omega, t)$	differenzielle Absorptionsänderung
ΔR	differenzielle Reflektionssänderung
ΔT	differenzielle Absorptionsänderung
\mathcal{E}	elektrisches Feld
E_G	Bandlückenenergie
E_{LB}	Leitungsbandenergie
E_N	Stickstoffstörstellenbandenergie
E_{VB}	Valenzbandenergie
EN	Elektronegativität
$f_{e,\vec{k}}$	Elektronenverteilungsfunktion
$f_{e,\vec{k}}$	Lochverteilungsfunktion
Γ	Einschlussfaktor
$\Gamma(\omega)$	Zerfallsrate
G	Modaler Verstärkungskoeffizient
g	Materialverstärkungskoeffizient
H_0	Hamiltonoperator des ungestörten Festkörpers
H_{l-m}	Hamiltonoperator der Licht-Materie-Wechselwirkung
h	Planksches Wirkungsquantum
\hbar	$h/2\pi$
I	Intensität
j_{th}	Schwellstromdichte
L	Schichtdicke
k_B	Boltzmannkonstante
λ	Wellenlänge

m_{ij}^*	effektive Masse
μ	Dipolmatrizelement
N_{ph}	Photonenzahl
n	Brechungsindex
n_0	linearer Brechungsindex
n_2	nichtlinearer Brechungsindex, Kerr-Koeffizient
n_e	Elektronendichte
n_h	Lochdichte
n_{ph}	Photonendichte
\mathcal{P}	Polarisation
P	Leistung
P_{BG}	Hintergrundsignal
P_{PL}	detektierte Leistung der Photolumineszenz
P_{T0}	transmittierte Lichtleistung ohne optische Anregung
P_{TP}	transmittierte Lichtleistung mit optischer Anregung
p	mikroskopische Polarisation
$\Omega_{\vec{k}}$	renormalisierte Rabifrequenz
ω	Kreisfrequenz
R	Reflexionsvermögen
r	Ortskoordinate
T	Temperatur
T	Transmission
T_0	charakteristische Temperatur
t	Zeit
τ	Zeitkonstante
χ	elektrische Suszeptibilität

A.2 Abkürzungen

21	Die halbe Wahrheit
BAC	<i>Band-Anti-Crossing</i> , Bandabstoßung
DTS	Differenzielle Absorptionsspektroskopie
FWHM	engl. <i>Full-Width at Half-Maximum</i> , volle Halbwertsbreite
MBE	engl. <i>Molecular Beam Epitaxy</i> , Molekularstrahlepitaxy
HEMT	engl. <i>High Electron-Mobility Transistor</i>
MOVPE	engl. <i>Metal-Organic Vapour-Phase Epitaxy</i> Metallorganische Gasphasenepitaxie
MQW	engl. <i>Multiple Quantum Wells</i> , Mehrfachquantenfilm

LB	Leitungsband
LD	Laserdiode
LDA	Lokale-Dichte-Approximation
LED	Licht emittierende Diode, Leuchtdiode
LL	Leichtlochband
OPA	engl. <i>Optical Parametric Amplifier</i> Optischer Parametrischer Verstärker
OPO	Optischer Parametrischer Oszillator
PA	Photoinduzierte Absorption
PL	Photolumineszenz
PLE	engl. <i>Photoluminescence Excitation</i> Photolumineszenz-Anregungsspektroskopie
PR	Photoreflexion
QD	engl. <i>Quantum Dot</i> , Quantenpunkt
QW	engl. <i>Quantum Well</i> , Quantenfilm
RCE-PD	<i>Resonant-Cavity Enhanced Photo-Detector</i> Resonatorverstärkter Photodetektor
SBE	engl. <i>Semiconductor Bloch Equations</i> , Halbleiterblochgleichungen
SCH	engl. <i>Seperate-Confinement Heterostructure</i>
SESAM	engl. <i>Semiconductor Saturable-Absorber Mirror</i>
SL	Schwerlochband
SPM	Selbstphasenmodulation
TA	transiente Absorption, transiente Absorptionsspektroskopie
TPA	engl. <i>Two-Photon Absorption</i> , Zweiphotonenabsorption
VCSEL	engl. <i>Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser</i> oberflächenemittierender Halbleiterlaser
VECSEL	engl. <i>Vertical External-Cavity Surface-Emitting Laser</i> oberflächenemittierender Halbleiterlaser mit externem Resonator
WZMW	Wissenschaftliches Zentrum für Materialwissenschaften
XPM	engl. <i>Cross-Phase Modulation</i> , Kreuzphasenmodulation
XRD	engl. <i>X-Ray Diffraction</i> , Röntgenbeugung

Literaturverzeichnis

- [Ale95] A. ALEXANDROU, V. BERGER und D. HULIN. *Physical Review B*, **52**(7): 4654–4657, August 1995.
- [Bha] P. BHATTACHARYA. *Semiconductor Optoelectronic Devices*. Prentice Hall, 2nd Auflage.
- [Bor00] P. BORRI, W. LANGBEIN, J. M. HVAM, F. HEINRICHSORFF, M.-H. MAO und D. BIMBERG. *IEEE Journal of Selected Topics in quantum Electronics*, **6**(3): 544–551, Mai/Juni 2000.
- [Bor01] P. BORRI, W. LANGBEIN, J. M. HVAM, F. HEINRICHSORFF, M.-H. MAO und D. BIMBERG. *phys. stat. sol. (b)*, **224**(2): 419–423, 2001.
- [Bro] M. R. BROZEL und G. E. STILLMAN (Herausgeber). *Properties of Gallium Arsenide*. 3rd Auflage.
- [Cal02] S. CALVEZ, D. BURNS und M. D. DAWSON. *IEEE Photonics Technology Letters*, **14**(2): 131–133, Februar 2002.
- [Car05] H. CARRERE, X. MARIE, J. BARRAU und T. AMAND. *Applied Physics Letters*, **86**(7): 071116, 2005.
- [Cha04a] S. CHATTERJEE, C. ELL, S. MOSOR, G. KHITROVA, H. GIBBS, W. HOYER, M. KIRA, S. KOCH, J. P. PRINEAS und H. STOLZ. *Physical Review Letters*, **92**: 067402, 6 2004.
- [Cha04b] J.-M. CHAUVEAU, A. TRAMPERT, K. H. PLOOG und E. TOURNIE. *Applied Physics Letters*, **84**(14): 2503–2505, April 2004.
- [Cha05] Y.-A. CHANG, H.-C. KUO, Y.-H. CHANG und S.-C. WANG. *Applied Physics Letters*, **87**(6): 061908, August 2005.
- [Cho01] C. K. CHOI, B. D. LITTLE, Y. H. KWON, J. B. LAM, J. J. SONG, Y. C. CHANG, S. KELLER, U. K. MISHRA und S. P. DENBAARS. *Physical Review B*, **63**: 195302, 2001.

- [Dam05] B. DAMILANO, J. BARJON, J.-Y. DUBOZ, J. MASSIES, A. HIERRO, J.-M. ULLOA und E. CALLEJA. *Applied Physics Letters*, **86**: 071105, 2005.
- [Don03] G. P. DONATI, R. KASPI und K. J. MALLOY. *Journal of Applied Physics*, **94**(9): 5814–5819, November 2003.
- [Eic93] H.-J. EICHLER, A. FLEISCHLER, J. KROSS, M. KRYSTEK, H. LANG, H. NIEDRIG, H. RAUCH, G. SCHMAHL, H. SCHOENEBECK, E. SEDLMAYER, H. WEBER und K. WEBER. *Bergmann · Schäfer - Lehrbuch der Experimentalphysik Band 3: Optik*, Band 3. de Gruyter, 1993.
- [Ell99] C. ELLMERS, F. HÖHNSDORF, J. KOCH, C. AGERT, S. LEU, D. KARAIKAJ, M. HOFMANN, W. STOLZ und W. W. RÜHLE. *Applied Physics Letters*, **74**(16): 2271–2273, April 1999.
- [Fan03] W. J. FAN, S. T. NG, S. F. YOON, M. F. LI und T. C. CHONG. *Journal of Applied Physics*, **93**(9): 5836–5838, Mai 2003.
- [Fan04] W. H. FAN, S. M. OLAIZOLA, J.-P. R. WELLS, A. M. FOX, T. WANG, P. J. PARBROOK, D. J. MOWBRAY und M. S. SKOLNICK. *Applied Physics Letters*, **84**(16): 3052, April 2004.
- [Fis01] M. O. FISCHER, M. REINHARDT und A. FORCHEL. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, **7**(2): 149–151, März/April 2001.
- [Gas04] M. H. GASS, A. J. PAPWORTH, T. B. JOYCE, T. J. BULLOUGH und P. R. CHALKER. *Applied Physics Letters*, **84**(9): 1453–1455, März 2004.
- [Gep02] T. GEPPERT. Diplomarbeit, Albert-Ludwigs-Universität, Freiburg, März 2002.
- [Gle95a] E. N. GLEZER, Y. SIEGAL, L. HUANG und E. MAZUR. *Physical Review B*, **51**(15): 9589–9596, April 1995.
- [Gle95b] E. N. GLEZER, Y. SIEGAL, L. HUANG und E. MAZUR. *Phys. Rev B*, **51**(11): 6959, März 1995.
- [Gra05] R. GRANGE, A. RUTZ, V. LIVERINI, M. HAIML, S. SCHON und U. KELLER. *Applied Physics Letters*, **87**: 132103, September 2005.
- [Gre02] L. GRENOUILLET, C. BRU-CHEVALLIER, G. GUILLOT, P. GILET, P. BALLE, P. DUVAUT, G. ROLLAND und A. MILLION. *Journal of Applied Physics*, **91**(9): 5902–5908, Mai 2002.
- [Grü04] H. GRÜNING. Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 2004.

- [Hak73] B. HAKKI und T. PAOLI. *J. Appl. Physics*, **44**(9): 4113–4119, September 1973.
- [Hak75] B. HAKKI und T. PAOLI. *J. Appl. Physics*, **46**(3): 1299–1306, März 1975.
- [Han05a] Q. HAN, X. H. YANG, Z. C. NIU, H. Q. NI, Y. Q. XU, S. Y. ZHANG, Y. DU, L. H. PENG, H. ZHAO, C. Z. TONG, R. H. WU und Q. M. WANG. *Applied Physics Letters*, **87**: 111105, 2005.
- [Han05b] K. HANTKE. Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 2005.
- [Har89] W. A. HARRISON. *Electronic Structure and Properties of Solids*. Dover, New York, 1989.
- [Har00] J. S. HARRIS, JR. *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics*, **6**(6): 1145–1160, November/Dezember 2000.
- [Har01] J. S. HARRIS, JR. *Journal of Korean Physical Society*, **39**: 306–312, Dezember 2001.
- [Hau] H. HAUG und S. W. KOCH. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. World Scientific.
- [Hec01] E. HECHT. *Optik*. Oldenbourg Wissenschaftsverlag, 2001.
- [Her99] J. B. HEROUX, X. YANG und W. I. WANG. *Applied Physics Letters*, **75**(18): 2716–2718, November 1999.
- [Hof01] M. HOFMANN, A. WAGNER, C. ELLMERS, C. SCHLICHENMEIER, F. H. S. SCHÄFER, J. HADER, J. V. MOLONEY, E. P. O'REILLY, A. Y. E. B. BORCHERT und H. RIECHERT. *Applied Physics Letters*, **78**(20): 3009–3011, Mai 2001.
- [Hof02] M. R. HOFMANN, N. GERHARDT, A. M. WAGNER, C. ELLMERS, F. HÖHNSDORF, J. KOCH, W. STOLZ, S. W. KOCH, W. W. RÜHLE, J. HADER, J. V. MOLONEY, E. P. O'REILLY, B. BORCHERT, A. Y. EGOROV, H. RIECHERT, H. C. SCHNEIDER und W. W. CHOW. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **38**(2): 213–221, Februar 2002.
- [Hua98] L. HUANG, J. P. CALLAN, E. N. GLEZER und E. MAZUR. *Physical Review Letters*, **80**(1): 185–188, Januar 1998.
- [Hun93] S. HUNSCH, H. HEESEL, A. EWERTZ und H. KURZ. *Physical Review B*, **48**(24): 17818–17826, Dezember 1993.

- [Ihn04] S.-G. IHN, S.-J. JO und J.-I. SONG. *Applied Physics Letters*, **85**(26): 6335–6337, Dezember 2004.
- [Jas05] G. JASCHKE, R. AVERBECK und L. G. AAND H. RIECHERT. *Journal of Crystal Growth*, **278**(1-4): 224–228, Januar 2005.
- [Jou03] T. JOUHTI, J. KONTTINEN, S. KARIRINNE, O. G. OKHOTNIKOV und M. PESSA. *IEE Proceedings-Optoelectronics*, **150**(1): 77–79, Februar 2003.
- [Ken03] P. R. C. KENT und A. ZUNGER. *Applied Physics Letters*, **82**(4): 559–561, Januar 2003.
- [Kim01] C. K. KIM und Y. H. LEE. *Applied Physics Letters*, **79**(19): 3038, November 2001.
- [Kit97] T. KITATANI, M. KONDOW, S. NAKATSUKA, Y. YAZAWA und M. OKAI. *IEEE Selected Topics in Quantum Electronics*, **3**(2): 206–209, April 1997.
- [Kla01] P. J. KLAR, H. GRÜNING, J. KOCH, S. SCHÄFER, K. VOLZ, W. STOLZ, W. HEIMBRODT, A. M. K. SAADI, A. LINDSAY und E. P. O'REILLY. *Physical Review B*, **64**: 121203, September 2001.
- [Kla03] P. J. KLAR. *Progress in Solid State Chemistry*, **34**(4): 301–349, 2003.
- [Kno88] W. H. KNOX, D. S. CHEMLA, J. E. CUNNINGHAM und J. E. HENRY. *Physical Review Letters*, **61**(11): 1290–1294, September 1988.
- [Koc02] J. KOCH. Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 2002.
- [Kon96a] M. KONDOW, K. UOMI, T. KITATANI, S. WATAHIKI und Y. YAZAWA. *Journal of Crystal Growth*, **164**(1-4): 175–179, 1996.
- [Kon96b] M. KONDOW, K. UOMI, A. NIWA, S. WATAHIKI und Y. YAZAWA. *Japanese Journal of Applied Physics*, **35**(2B): 1273–1275, 1996.
- [Kon02] M. KONDOW und T. KITATANI. *Semiconductor Science and Technology*, **17**: 746–754, 2002.
- [Kud03] R. KUDRAWIEC, G. SEK, J. MISIEWICZ, D. GOLLUB und A. FORCHEL. *Applied Physics Letters*, **83**(14): 2772–2774, Oktober 2003.
- [Kun05] B. KUNERT. Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 2005.
- [Lei96] A. LEITENSTORFER, C. FÜRST, A. LAUBEREAU und W. KAISER. *Physical Review Letters*, **76**(9): 1545–1548, Februar 1996.

- [Li03] L. LI, G. PATRIARCHE, A. LEMAITRE, L. LARGEAU, L. TRAVERS und J. HARMAND. *Journal of Crystal Growth*, **251**: 403–407, Februar 2003.
- [Lin87] W. Z. LIN, L. G. FUJIMOTO und E. P. IPPEN. *Applied Physics Letters*, **50**(3): 124–126, Januar 1987.
- [Lin05] H. LINDBERG, M. SADEGHI, M. WESTLUND, S. M. WANG, A. LARSSON, M. STRASSNER und S. MARCINKEVICIUS. *Optics Letters*, **30**(20): 2793–2795, Oktober 2005.
- [Liu03] H. F. LIU, C. S. PENG, E.-M. PAVELESCU, S. KARIRINNE, T. JOUHTI, M. VALDEN und M. PESSA. *Applied Physics Letters*, **82**(15): 2428–2430, April 2003.
- [Liu05] C. LIU, S. YOON, W. FAN, J. R. TEO und S. YUAN. *Optics Express*, **13**(22): 9045–9051, Oktober 2005.
- [Liv04] V. LIVERINI, S. SCHON, R. GRANGE, M. HAIML, S. C. ZELLER und U. KELLER. *IEEE Proceedings-Oproelectronics*, **151**(5): 437–441, Oktober 2004.
- [Lor03] V. LORDI, V. GAMBIN, S. FRIEDRICH, T. FUNK, T. TAKIZAWA, K. UNO und J. S. HARRIS. *Physical Review Letters*, **90**(14): 14505, April 2003.
- [Mad] O. MADELUNG (Herausgeber). *Landolt-Börnstein Band 22: Halbleiter*, Band 22. Springer Verlag.
- [McG05] W. M. MCGEE, P. A. BONE, R. S. WILLIAMS und T. S. JONES. *Applied Physics Letters*, **87**(18): 181905, Oktober 2005.
- [McW05] A. MCWILLIAM, A. A. LAGATSKY, C. G. LEBUM, P. F. C. T. A. BROWN, G. J. VALENTINE, A. J. KEMP, S. CALVEZ, D. BURNS, M. D. DAWSON, M. PESSA und W. SIBBETT. *IEEE Photonics Technology Letters*, **17**(11): 2292–2294, November 2005.
- [Mei04] T. MEIER. Dynamics of nonlinear optical excitations. Vorlesung, Philipps-Universität Marburg, Sommersemester 2004.
- [Mon02] C. MONIER, A. G. BACQA, P.-C. CHANG, F. D. NEWMAN, N. Y. LI, S. Z. SUN und H. Q. HOU. *IEEE Transactions on Electronic Devices*, **49**(8): 1329–1335, August 2002.
- [MS04] J. MIGUEL-SÁNCHEZ, A. GUZMÁN, J. M. ULLOA, A. HIERRO und E. MUNOZ. *Applied Physics Letters*, **84**(14): 2524–2526, April 2004.

- [Muk95] S. MUKAMEL. *Nonlinear Optical Spectroscopy*. Oxford University Press, 1995.
- [Mus05] G. MUSSLER, L. DÄWERITZ und K. H. PLOOG. *Applied Physics Letters*, **87**: 081903, 2005.
- [Okh03] O. G. OKHOTNIKOV, T. JOUHTI, J. KONTTINEN, S. KARIRINNE und M. PESSA. *Optics Letters*, **25**(5): 364–366, März 2003.
- [Oye05] M. M. OYE, S. GOVINDARAJU, R. SIDHU, J. M. REIFSNIDER und A. L. HOLMES, JR. *Applied Physics Letters*, **86**: 151903, 2005.
- [Pal05] D. J. PALMER, P. M. SMOWTON, P. BLOOD, J.-Y. YEH, L. J. MAWST und N. TANSU. *Applied Physics Letters*, **86**: 071121, 2005.
- [Pan01] Z. PAN, L.-H. LI, Y.-Q. XU, W. ZHANG, Y.-W. LIN, R.-K. ZHANG, Y. ZHONG und X.-M. REN. *Chinese Physics Letters*, **18**(9): 1249–1251, 2001.
- [Par05] S.-H. PARK. *phys. stat. sol. (B)*, **242**(5): 1022–1026, 2005.
- [Pat05] A. PATANE, J. ENDICOTT, J. IBÁÑEZ, P. N. BRUNKOV, L. EAVES, S. B. HEALY, A. LINDSAY, E. P. O'REILLY und M. HOPKINSON. *Physical Review B*, **71**: 195307, 2005.
- [Pen02] C. S. PENG, T. JOUHTI, P. LAUKKANEN, E.-M. PAVELESCU, J. KONTTINEN, W. LI, und M. PESSA. *IEEE Photonics Technology Letters*, **14**(3): 275–277, März 2002.
- [Pen05] C. PENG, H. LIU, J. KONTTINEN und M. PESSA. *Journal of Crystal Growth*, **278**: 259–263, 2005.
- [Pla05] J. PLAZA, J. L. CASTANO, B. J. GARCIA, H. CARRERE und E. BEDELPEREIRA. *Applied Physics Letters*, **86**: 121918, 2005.
- [Pol00] A. POLIMENI, M. CAPIZZI, M. GEDDO, M. R. M. FISCHER und A. FORCHEL. *Applied Physics Letters*, **77**(18): 2870–272, Oktober 2000.
- [Qiu05] Y. N. QIU und J. M. RORISON. *Applied Physics Letters*, **87**(081111), 2005.
- [Ros94] F. ROSSI, S. HAAS und T. KUHN. *Physical Review Letters*, **72**: 152–155, Januar 1994.
- [Rub04] O. RUBEL, K. VOLZ, T. TORUNSKI, S. D. BARANOVSKI, F. GROSSE und W. STOLZ. *Applied Physics Letters*, **85**(24): 5908–5910, Dezember

2004.

- [Rub05] O. RUBEL, K. VOLZ, T. TORUNSKI, S. D. BARANOVSKI, F. GROSSE und W. STOLZ. *Applied Physics Letters*, **87**: 049903, Juli 2005.
- [Sai98] H. SAITO, T. MAKIMOTO und N. KOBAYASHI. *Journal of Crystal Growth*, **195**: 416, 1998.
- [Sch05a] C. SCHLICHENMAIER. Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 2005.
- [Sch05b] C. SCHLICHENMAIER, T. M. A. THRÄNHARDT, S. W. KOCH, W. W. CHOW, J. HADER und J. V. MOLONEY. *Applied Physics Letters*, **87**: 261109, 2005.
- [Sch05c] S. SCHON, A. RUTZ, V. LIVERINI, R. GRANGE, M. HAIML, S. C. ZELLER und U. KELLER. *Journal of Crystal Growth*, **278**(1-4): 239–243, Mai 2005.
- [Sch06] C. SCHLICHENMAIR. persönliche Mitteilung, März 2006.
- [Sha96] J. SHAH. *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*. Springer, 1996.
- [Sod79] H. SODA, K. IGA, C. KITAHARA und Y. SUEMATSU. *Jpn. Journal of Applied Physics*, **18**: 2329–2330, 1979.
- [Spu05] G. J. SPUHLER, K. J. WEINGARTEN, R. GRANGE, L. KRAINER, M. HAIML, V. LIVERINI, M. GOLLING, S. SCHON und U. KELLER. *Applied Physics B - Lasers and Optics*, **81**(1): 27–32, Juli 2005.
- [Su06] Y. K. SU, S. H. HSU, C. C. SIO, W. C. CHEN und S. J. CHANG. *Semiconductor Science and Technology*, **21**(2): 167–170, Februar 2006.
- [Sun03a] H. D. SUN, R. MACALUSO, M. D. DAWSON, F. ROBERT, A. C. BRYCE, J. H. MARSH und H. RIECHERT. *Journal of Applied Physics*, **94**(3): 1550–1556, August 2003.
- [Sun03b] L. W. SUNG und H. H. LIN. *Applied Physics Letters*, **83**(6): 1107, August 2003.
- [Sun04] H. D. SUN, R. MACALUSO, S. CALVEZ, G. J. VALENTINE, D. BURNS, M. D. DAWSON, K. GUNDOGDU, K. C. HALL, T. F. BOGGESE, T. JOUHTI und M. PESSA. *Journal of Applied Physics*, **96**(3): 1418–1424, August 2004.

- [Sun05] H. D. SUN, A. H. CLARK, S. CALVEZ, M. D. DAWSON, K. S. KIM, T. KIM und Y. J. PARK. *Applied Physics Letters*, **87**: 021903, 2005.
- [Tan02] N. TANSU, N. J. KIRSCH und L. J. MAWST. *Applied Physics Letters*, **81**(14): 2523–2525, September 2002.
- [Tan03a] N. TANSU, J.-Y. YEH und L. J. MAWST. *Applied Physics Letters*, **83**(11): 2112–2114, September 2003.
- [Tan03b] N. TANSU, J.-Y. YEH und L. J. MAWST. *Applied Physics Letters*, **83**(13), September 2003.
- [Thr04] A. THRÄNHARDT, S. BECKER, C. SCHLICHENMAIER, I. KUZNETSOVA, T. MEIER und S. W. KOCH. *Applied Physics Letters*, **85**(23): 5526–5528, Dezember 2004.
- [Thr05] A. THRÄNHARDT, I. KUZNETSOVA, C. SCHLICHENMAIER, S. W. KOCH, L. SHTERENGAS, G. BELENKY, J.-Y. YEH, L. J. MAWST, N. TANSU, J. HADER, J. V. MOLONEY und W. W. CHOW. *Applied Physics Letters*, **86**: 201117, 2005.
- [Tix05] S. TIXIER, S. E. WEBSTER, E. C. YOUNG, T. TIEDJE, S. FRANCOEUR, A. MASCARENHAS, P. WEI und F. SCHIETTEKATTE. *Applied Physics Letters*, **86**: 112113, 2005.
- [Tom95] R. TOMMASI, P. LANGOT und F. VALLEE. *Applied Physics Letters*, **66**(11): 1361–1363, März 1995.
- [Tom05] S. TOMIC und E. P. O'REILLY. *Physical Review B*, **71**: 233301, 2005.
- [Tu01] C. W. TU. *Journal of Physics - Condensed Matter*, **13**(32): 7169–7182, August 2001.
- [Vin03] A. VINATTIERI, D. ALDERIGHI, M. ZAMFIRESCU, M. COLOCCI, A. POLIMENI, M. CAPIZZI, D. GOLLUB, M. FISCHER und A. FORCHEL. *phys. stat. sol. (a)*, **195**(3): 558–562, Februar 2003.
- [Vol04] K. VOLZ, T. TORUNSKI, B. KUNERT, O. RUBEL, S. NAU, S. S. REINHARD und W. STOLZ. *Journal of Crystal Growth*, **272**(1-4): 739–747, Dezember 2004.
- [Vol05] K. VOLZ, T. TORUNSKI und W. STOLZ. *Journal of Applied Physics*, **97**: 014306, Januar 2005.
- [Vur03a] I. VURGAFTMAN und J. R. MEYER. *Journal of Applied Physics*, **94**(6): 3675–3691, September 2003.

- [Vur03b] I. VURGAFTMAN, J. R. MEYER, N. TANSU und L. J. MAWST. *Applied Physics Letters*, **83**(14): 2742–2744, Oktober 2003.
- [Wag00] A. WAGNER, C. ELLMERS, F. HÖHNSDORF, J. KOCH, S. LEU, W. STOLZ, M. HOFMANN und W. RÜHLE. *phys. stat. sol. (B)*, **221**: 567, 2000.
- [Wan97] J. WANG und H. C. SCHWEIZER. *IEEE Journal of Selected Topics of Quantum Electronics*, **3**(2): 218–222, April 1997.
- [Wei03] B. A. WEINSTEIN, S. R. STAMBACH und T. M. RITTER. *Physical Review B*, **68**: 035336, July 2003.
- [Wei05] Y. Q. WEI, Y. FU, X. D. WANG, P. MODH, P. O. HEDEKVIST, Q. F. GU, M. SADEGHI, S. M. WANG und A. LARSSON. *Applied Physics Letters*, **87**(081102), 2005.
- [Wu04] C. H. WU, Y. K. SU, S. C. WEI, S. J. CHANG, C. SIO und W. C. CHEN. *Japanese Journal of Applied Physics Part 1 - Regular Papers, Short Notes and Review Papers*, **43**(4B): 1919–1924, April 2004.
- [Yan05a] H.-P. D. YANG, C. LU, R. HSIAO, C. CHIOU, C. LEE, C. HUANG, H. YU, C. WANG, K. LIN, N. A. MALEEV, A. R. KOVSH, C. SUNG, C. LAI, J. WANG, J. CHEN, T. LEE und J. Y. CHI. *Semiconductor Science and Technology*, **20**: 834–839, Juli 2005.
- [Yan05b] Z. S. YANG, N. H. KWONG, R. BINDER und A. L. SMIRL. *Optics Letters*, **30**(20): 2790–2792, Oktober 2005.
- [Yan05c] Z. S. YANG, N. H. KWONG, R. BINDER und A. L. SMIRL. *Journal of the Optical society of America B - Optical Physics*, **22**(10): 2144–2156, Oktober 2005.
- [Yok89] H. YOKOYAMA und S. D. BRORSON. *Journal of Applied Physics*, **66**(10): 4801–4803, November 1989.
- [Yon02] H. YONEZU. *Semiconductor Science and Technology*, **17**: 762–768, Juli 2002.
- [Zha04] Q. X. ZHAO, S. M. WANG, Y. Q. WEI, M. SADEGHI, A. LARSSON und M. WILLANDER. *Appl. Phys. Lett.*, **86**: 121910, 2004.

Danksagung

Vier Jahre sind eine lange Zeit und ich möchte diese Stelle nutzen, um all denjenigen zu Danken, die mich in dieser Zeit auf die eine oder andere Art begleitet haben.

- Zunächst möchte Prof. Dr. W. W. Rühle danken, dass er mir diese Promotion ermöglicht hat.
- Ein weiteres dickes Dankeschön an meinen Betreuer Dr. Sangam Chatterjee, der mir immer mit Rat und Tat in allen Fragen der Physik und der experimentellen Arbeit zur Hilfe stand.
- Ganz wichtig ist natürlich auch mein bester Mitarbeiter Christoph Lange, der als mein Diplomand viel zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen hat.
- Nicht weniger wichtig sind natürlich auch all meine Mitdoktoranden und Weggefährten in der AG Experimentelle Halbleiterphysik der vergangenen Jahre: Kristian Hantke, Mirko Leuschner, Eckhart Finger, Jens Hübner, Markus Bender, Martin Güngerich und Gunnar Blume. Auch will ich die Diplomandencrew nicht vergessen, die immer für das gute Betriebsklima mitverantwortlich war: Swantje Horst, Torben Grunwald, Kapil Kohli und Josef Kovacs. Viel Glück in der Zukunft bei euren eigenen Promotionen.
- Torsten Torunski, Igor Nemeth und Stefan Oberhoff danke ich für die Hilfestellungen zum Probenätzen und -polieren. Dank auch dem Rest der Lahnbergecrew für vielerlei Diskussionen, Anregungen und zur Verfügung gestellte Proben.
- Rüdiger Rink, Hermann Günther und der Werkstatt sei gedankt für die Hilfe bei mechanischen Problemen aller Art. Insbesondere meine unvorhersehbaren(?) Sonderwünsche wurde immer schnell und kompetent umgesetzt.
- Matthias Born und Carsten Schindler danke ich für die Unterstützung, auch am Wochenende, bei allen möglichen Elektronikproblemen und -katastrophen.
- Christoph Schlichenmaier danke ich für die theoretischen Rechnungen und

allerlei lehrreicher Diskussionen zur Theorie.

- All meinen Freunden und Bekannten danke ich dafür, dass sie mich auch in meinen unerträglichen Momenten ertragen haben.

Wissenschaftlicher Werdegang

SEBASTIAN BORCK

geboren am 27.12.1975
in Stadthagen, Niedersachsen.

06/1995	Abitur, Wilhelm-Busch-Gymnasium Stadthagen (Niedersachsen)
10/1995 - 09/1996	Grundwehrdienst bei der Luftwaffe Heide (Holstein) / Visselhövede
10/1996 - 12/2001	Physikstudium, Universität Hannover Institut für Festkörperphysik Abteilung Nanostrukturen bei Prof. Dr. R. Haug
11/2000 - 11/2002	Diplomarbeit, Universität Hannover
seit 05/2002	Promotion, Philipps-Universität, Marburg/Lahn Fachbereich Physik AG Experimentelle Halbleiterphysik bei Prof. Dr. W. W. Rühle

